THÈSE

PRÉSENTÉE

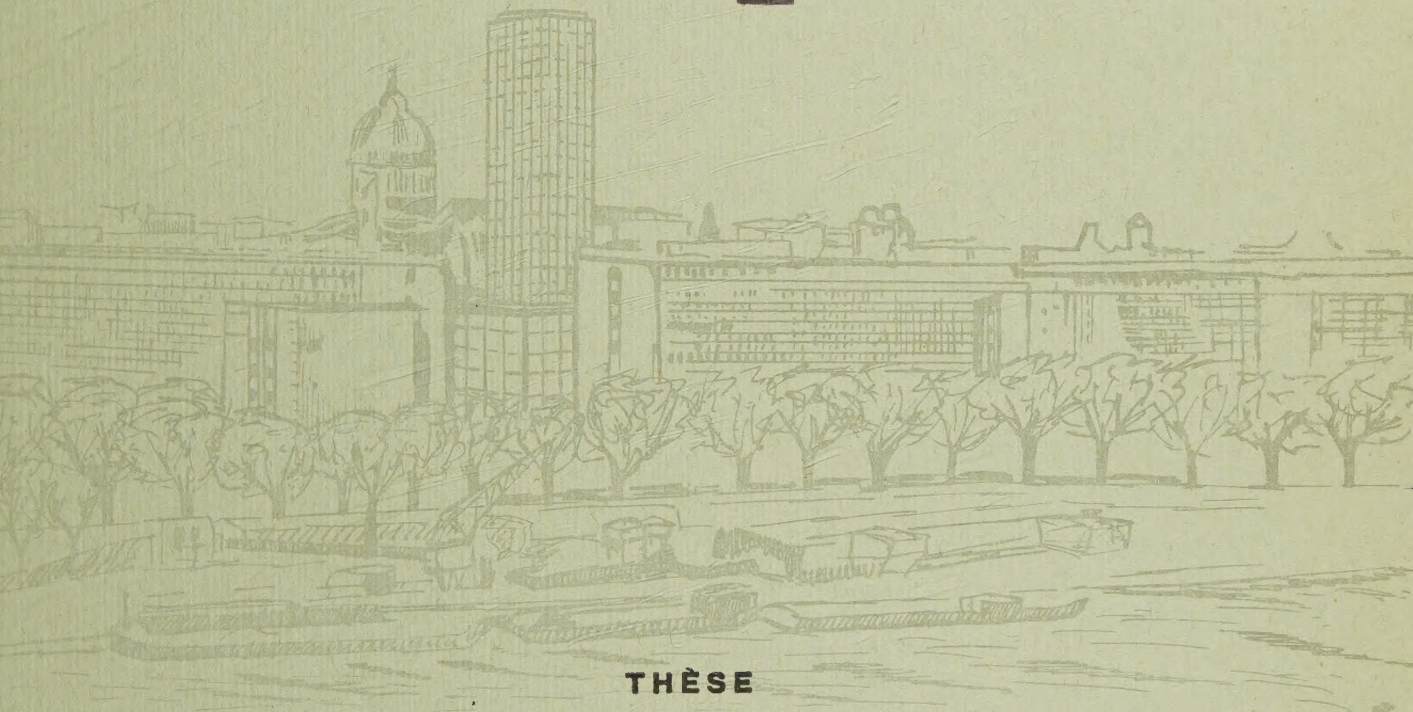
A L'UNIVERSITÉ DE PARIS VI

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

BENOÎT FERRY



THÈSE

INTERACTIONS ENTRE LES ULTRASONS ET LES ONDES DE SPIN DANS LES DIFFÉRENTES PHASES MAGNÉTIQUES D'UN ANTIFERROMAGNÉTIQUE UNIAXIAL

soutenue le 28 FEVRIER 1974 devant la Commission d'Examen

Président : M. J. BOK

Examinateurs : MM. J. JOFFRIN
J.M. WINTER
A. ZAREMBOVITCH

THESE

présentée

À L'UNIVERSITÉ PARIS VI

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

BENOÎT FERRY

INTERACTIONS ENTRE LES ULTRASONS ET LES ONDES DE SPIN DANS LES DIFFÉRENTES PHASES MAGNÉTIQUES D'UN ANTIFERROMAGNÉTIQUE UNIAXIAL

soutenue le 28 FEVRIER 1974 devant la Commission d'Examen

Président : M. J. BOK

Examinateurs : MM. J. JOFFRIN
J.M. WINTER
A. ZAREMBOVITCH

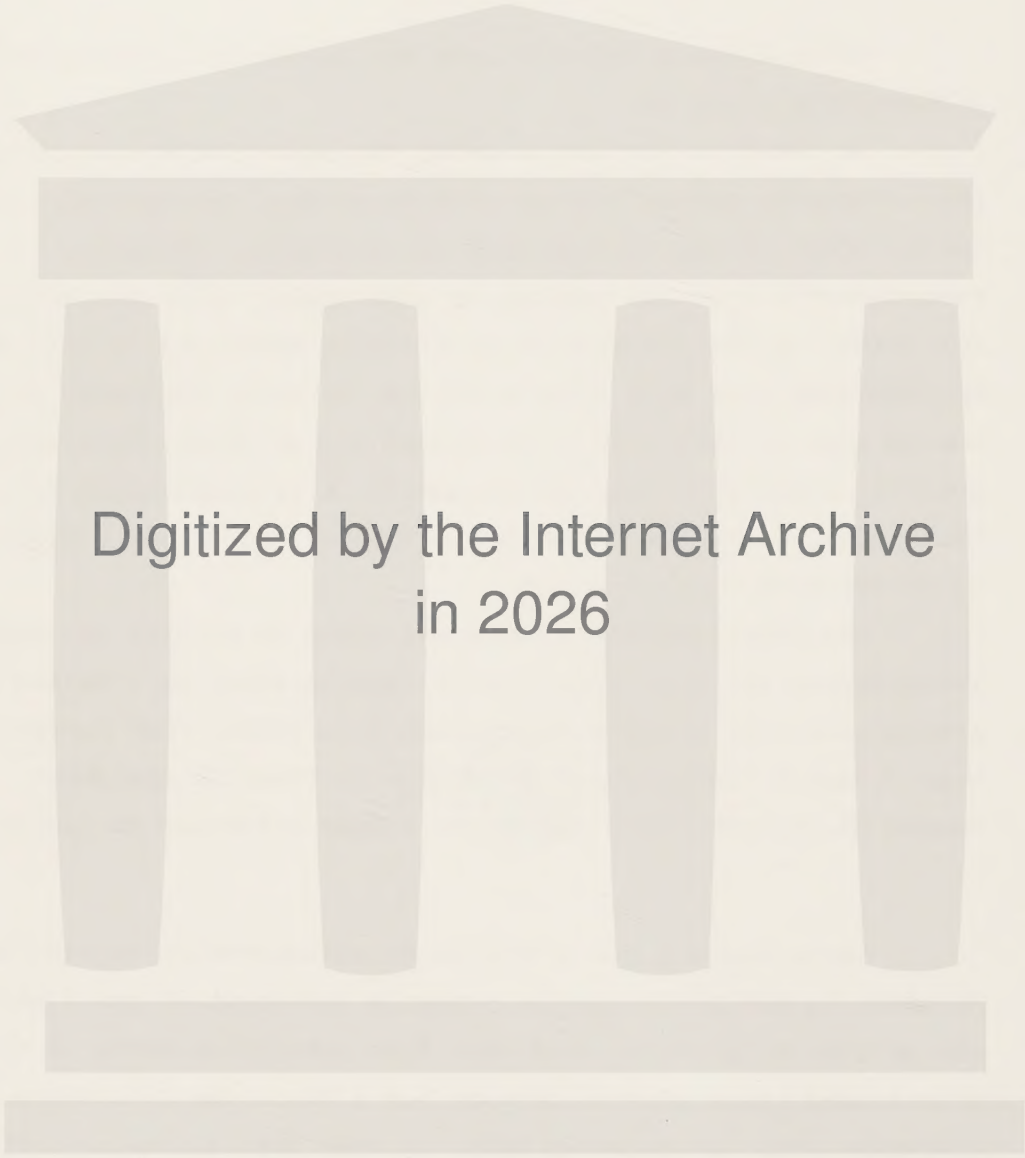
UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Cette thèse a été effectuée au Laboratoire d'Ultrasons de l'Université Paris VI.

Je remercie particulièrement Messieurs JOFFRIN et LEVELUT pour l'accueil qu'ils m'y ont réservé et pour les conseils précieux qu'ils m'ont donnés tout au long de ce travail. J'associe à mes remerciements tous les membres du laboratoire qui, par leur concours, ont permis sa réalisation, en particulier Messieurs FRENOIS et RAJAONARISON pour leur aide technique, Monsieur MACHORINE et son équipe pour la taille et le polissage des cristaux, Monsieur LEGROS pour les dessins et pour la conception et la réalisation des ensembles mécaniques, ainsi que Mademoiselle HENEAUX qui assure efficacement le secrétariat du laboratoire.

Mes remerciements s'adressent aussi au service des basses températures qui a pu nous fournir régulièrement de l'hélium en grande quantité, ainsi qu'à Monsieur H.J. SCHEEL (IBM Zurich) qui nous a fourni les cristaux de $GdAlO_3$. Je remercie également Madame LE TOULLEC qui a assuré une frappe attentive et rapide du texte.

Cette étude a été effectuée en collaboration étroite avec Monsieur P. DOUSSINEAU que je remercie également et que j'assure de mon amitié. A ce titre, elle doit être considérée comme un élément d'un travail plus général portant sur l'étude des interactions des ultrasons avec les ondes de spin, et avec les fluctuations critiques au voisinage des diverses transitions de phase des cristaux antiferromagnétiques. La présentation donnée ici envisage les phénomènes sous l'angle du couplage phonons-magnons. Le travail présenté parallèlement par Monsieur DOUSSINEAU se situe plutôt dans l'optique de la théorie des transitions de phase et des similitudes qui existent entre les diverses transitions.


Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41549224_0007

PLAN

page

INTRODUCTION..... 1

CHAPITRE I

GENERALITES SUR LES INTERACTIONS MAGNETOELASTIQUES ET PLUS PARTICULIEREMENT SUR LES INTERACTIONS PHONONS-MAGNONS..... 5

I-1 . *Mécanisme de couplage spin-phonons*..... 5

I-2 . *Effets physiques liés aux interactions spins-phonons*..... 7

Méthode d'études des interactions phonons-magnons..... 8

a - Methode ultrasonore..... 9

b - Résonance électronique et pompage parallèle..... 11

c - Mesures de conductibilité thermique..... 12

d - Mesures de grandeurs thermodynamiques statiques..... 13

CHAPITRE II.

PROPRIETES DES COMPOSES ANTIFERROMAGNETIQUES..... 15

II-1 . *Hamiltonien du système magnétique*..... 15

II-2 . *Propriétés statiques*..... 16

II-3 . *Propriétés dynamiques. Ondes de spin*..... 20

a - Ondes de spin dans la phase antiferromagnétique..... 20

b - Ondes de spin dans la phase floppée..... 23

c - Ondes de spin dans la phase paramagnétique..... 28

II-4 . *Problèmes liés à la transition spin-flop*..... 29

CHAPITRE III.

COUPLAGE DES ULTRASONS AVEC LES ONDES DE SPIN DANS LES COMPOSES ANTIFERROMAGNETIQUES..... 34

III-1. *Différentes possibilités de couplage des ultrasons avec les ondes de spin*..... 35

III-2. *Phase antiferromagnétique*..... 37

page

III-3 . *Phase floppée*..... 40
III-4 . *Phase paramagnétique*..... 42
III-5 . *Ondes magnétoélastiques. Influence sur les champs de transition*..... 43
III-6 . *Calcul de l'atténuation ultrasonore*..... 45

CHAPITRE IV.
COUPLAGE MAGNONS-PHONONS DANS $GdAlO_3$..... 48

IV-1 . *Propriétés cristallographiques et magnétiques de $GdAlO_3$*..... 48
IV-2 . *Hamiltonien de couplage phonons-magnons dans $GdAlO_3$*..... 49
IV-3 . *Couplage dans la phase antiferromagnétique*..... 51
a- Transition entre les deux modes d'ondes de spin.... 52
b- Couplage résonnant..... 53
IV-4 . *Couplage résonnant dans la phase floppée*..... 57

CHAPITRE V.
METHODE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX..... 61

V-1 . *Méthode expérimentale*..... 61
a-Production et détection des ondes ultrasonores..... 61
b-Dispositif cryogénique. Champ magnétique..... 62
V-2 . *Résultats expérimentaux*..... 63
a-Phase antiferromagnétique..... 64
b-Phases floppée et paramagnétique..... 65

CHAPITRE VI.
INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX..... 68

VI-1 . *Résultats expérimentaux dans la phase antiferromagnétique*..... 68
a - Résonance antiferromagnétique acoustique à basse température..... 68
b - Résonance antiferromagnétique acoustique en fonction de la température..... 70

page

- Variations de la largeur de raie en fonction de la température..... 70
- Comparaison avec les théories et expériences existantes..... 73

VI-2 . *Interprétation des résultats expérimentaux pour* $H > H_{sf}$..... 76

a - 9 GHz..... 77

b - 0,5 à 1,8 GHz..... 82

c - Remarques au sujet des transitions de phase examinées..... 86

CONCLUSION..... 89

APPENDICES..... 93

BIBLIOGRAPHIE..... 100

INTRODUCTION

L'intérêt des méthodes ultrasonores en physique et particulièrement en physique des solides vient du fait qu'elles permettent a priori d'étudier tout phénomène ou toute grandeur physique qui peut être relié aux vibrations élastiques du milieu considéré. La mise au point il y a une quinzaine d'années de techniques de production d'ondes ultrasonores de très haute fréquence[1], a permis la réalisation de bon nombre d'études nouvelles sur des composés très variés (métaux, semi-conducteurs, ferroélectriques, magnétiques...).

En ce qui concerne les cristaux magnétiques, les ultrasons de haute fréquence ($\sim$ 10 GHz) ont été beaucoup utilisés pour des études de résonance paramagnétique acoustique ; depuis quelques années, l'intérêt s'est plutôt porté sur l'étude du couplage entre les ultrasons et les ondes de spin, et sur l'étude des transitions de phase dans les cristaux magnétiques concentrés (ferro, ferri, antiferromagnétiques). Pour étudier les interactions magnons-phonons, l'utilisation de hautes fréquences ultrasonores se révèle souvent avantageuse, à la fois pour des questions d'ordre de grandeur et d'identification des phénomènes observés. Pour ce qui est des transitions de phase, la possibilité de faire varier la fréquence dans une large gamme peut permettre l'étude de différents régimes pour les grandeurs thermodynamiques qui entrent en jeu : à basse fréquence, des informations précises seront obtenues sur les propriétés statiques adiabatiques en fonction du paramètre extérieur qui provoque la transition (température, pression, champ) ; à haute fréquence, des informations seront obtenues sur les propriétés dynamiques du système.

Le travail que nous présentons ici, qui recouvre en partie des articles que nous avons publiés [2-5], porte sur l'étude , au moyen d'ondesultrasonores de haute fréquence (0,5 à 1,8 GHz et 9 GHz) du couplage phonons-magnons et des transitions de phase magnétique dans un cristal antiferromagnétique uniaxial. On sait que dans un tel cristal, l'applicatio d'un champ magnétique provoque plusieurs changements de phase [6].

Lorsque le champ magnétique est appliqué suivant l'axe de facile aimantation, pour $H = H_{sf} \simeq \sqrt{2H_E H_A}$ (H_E = champ d'échange, H_A = champ d'anisotropie), l'aimantation de chaque sous-réseau bascule brusquement vers une nouvelle position d'équilibre ; cette transition est du premier ordre ; le cristal se trouve dans la phase floppée. Si le champ magnétique croît encore, les positions d'équilibre des spins se modifient progressivement jusqu'à ce que les aimantations des deux sous-réseaux deviennent parallèles, pour un champ $H = H_e \simeq 2H_E - H_A$; cette transition est du deuxième ordre ; le cristal se trouve alors dans la phase paramagnétique.

Lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, le cristal subit un seul changement de phase (du deuxième ordre), vers la phase paramagnétique, pour $H = H'_e \simeq 2H_E + H_A$.

A basse température ($T \ll T_N$), les excitations magnétiques du cristal sont correctement décrites en termes d'ondes de spin et plusieurs auteurs [7-10] ont calculé leurs fréquences dans les différentes phases. On peut montrer qu'à chacun des changements de phase mentionnés correspond un mode d'onde de spin dont la fréquence tend vers zéro.

Un intérêt des composés antiferromagnétiques provient du fait qu'ils peuvent être examinés en fonction d'un autre paramètre extérieur que la température : le champ magnétique.

Dans tous les changements de phase, on sait que le détail des interactions importe peu, et que le comportement du système est fonction essentiellement de ses propriétés de symétrie [11] : c'est cette idée qui est à la base des théories de Landau, ou des lois d'échelle, ou du couplage mode-mode, qui tentent de donner une description générale des transitions de phase sans faire appel à un modèle microscopique. L'étude des transition

dans les antiferromagnétiques peut donc permettre de tester ces théories en fonction du paramètre champ magnétique, et d'obtenir éventuellement des informations sur d'autres changements de phase qui présentent la même symétrie. Il convient de noter cependant que, si la transition spin-flop a pu être étudiée sur de nombreux cristaux, les transitions vers la phase paramagnétique à basse température ($T/T_N << 1$) par contre ont été peu explorées : les champs magnétiques nécessaires sont en général difficilement accessibles[12].

Les renseignements obtenus par les méthodes ultrasonores dans l'étude des transitions de phase ont déjà été précisés à plusieurs reprises[13-15]. Nous rappellerons seulement que le passage d'un point de changement de phase peut conduire à une forte variation d'atténuation ou de vitesse de phase de l'onde ultrasonore pouvant résulter de divers mécanismes qui sont essentiellement :

- le couplage résonnant phonons-magnons lorsque, à la transition, est associé un mode d'onde de spin dont la fréquence tend vers zéro à $k = 0$.

- le couplage non résonnant phonons-magnons qui peut devenir très important au voisinage des transitions par suite des fortes variations des populations thermiques de certains modes d'ondes de spin.

- le couplage des ultrasons avec les mouvements des parois de domaines magnétiques.

- le couplage avec certaines grandeurs magnétiques qui obéissent à des lois de conservation dans la limite des vecteurs d'onde nul, pourvu que leur temps de relaxation soit assez petit.

Dans les composés antiferromagnétiques, les études ultrasonores ont beaucoup porté sur la transition de Néel. La transition spin-flop a été examinée dans de nombreux composés[16-18]. La transition vers la phase paramagnétique a aussi été étudiée par des méthodes ultrasonores, mais toujours assez près du point de Néel[16].

Lorsque les ultrasons se propagent dans un cristal antiferromagnétique, ils peuvent se coupler directement de manière résonnante avec les ondes de spin (1 phonon → 1 magnon chaque fois que le vecteur d'onde et la fréquence des ultrasons et des ondes de spin coïncident, et pourvu

que les règles de sélection le permettent. De telles expériences permettent d'obtenir des renseignements sur certaines propriétés magnétiques statiques du cristal (anisotropie, direction des spins), le temps de relaxation des ondes de spin et les constantes de couplage magnétoélastique[2,4]. Il faut envisager aussi la possibilité d'un couplage entre trois modes (1 phonon et 2 modes magnétiques), qui n'est pas forcément un processus résonnant ; on sait que ce sont ces processus qui interviennent principalement au voisinage des transitions de phase du type transition de Néel[14].

Les expériences rapportées ici ont été réalisées sur $GdAlO_3$ avec un champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation et assez intense pour pouvoir atteindre la phase paramagnétique. Elles illustrent différentes manières de coupler les ultrasons avec les ondes de spin dans les différentes phases magnétiques et montrent quels types de renseignements on peut déduire des mesures de l'atténuation ultrasonore résultante. Dans le chapitre I, nous rappellerons quelques généralités sur le couplage magnétoélastique, en nous intéressant plus spécialement au couplage phonons-magnons. Dans le chapitre II, nous décrirons les propriétés générales des composés antiferromagnétiques à deux sous-réseaux : propriétés statiques (équilibre des aimantations des sous-réseaux), propriétés dynamiques (ondes de spin dans les différentes phases), transitions de phase. Le chapitre III sera consacré à une étude systématique des transitions que l'on peut induire à l'aide d'ultrasons entre différents modes de magnons, dans les différentes phases (antiferromagnétique, floppée, paramagnétique saturée),et à la détermination des mécanismes de couplage qui peuvent induire chaque transition. Dans le chapitre IV, nous examinerons les possibilités de couplage entre les ultrasons et les ondes de spin dans $GdAlO_3$. Dans le chapitre V seront présentés la méthode expérimentale et les résultats expérimentaux. Ceux-ci seront interprétés dans le chapitre VI. En conclusion, nous ferons un résumé des différents points abordés et nous envisagerons l'extension d'expériences semblables dans d'autres cristaux.

CHAPITRE I

GENERALITES SUR LES INTERACTIONS MAGNETOELASTIQUES, ET PLUS PARTICULIEREMENT SUR LES INTERACTIONS PHONONS-MAGNONS.

Considérons une onde acoustique se propageant dans un cristal, S'il existe un couplage entre cette onde et une grandeur physique quelconque du cristal, toute modification de ce couplage par variation d'un paramètre extérieur (température, pression, champ électrique ou magnétique...) aura une influence sur les conditions de propagation et se traduira par une variation de l'atténuation acoustique, de la vitesse de phase et de la vitesse de groupe. La mesure de ces variations permet d'obtenir des renseignements sur les grandeurs physiques qui interviennent dans le couplage, ainsi que sur les mécanismes de couplage eux-mêmes. Les paramètres extérieurs que nous considèrerons ici sont la température et le champ magnétique.

I-1 . *Mécanismes de couplage spins-phonons.*

L'idée la plus simple qui permet d'envisager un mécanisme de couplage entre les déformations élastiques et un système de spins est la suivante : supposons qu'il existe entre deux spins une interaction qui dépend de leur distance ; toute modification de cette distance se traduit par une variation de l'énergie d'interaction. Pour modifier cette distance, on peut soit appliquer une contrainte statique sur le cristal, soit y envoyer une onde acoustique. D'une façon générale, l'hamiltonien d'interaction s'écrit dans ce cas, au premier ordre :

$$\mathcal{H}_{int} = \sum_{i \neq j} \vec{\nabla}_{r_{ij}} \left[K(\vec{r}_{ij}) \right] \cdot \delta\vec{r}_{ij} \, f(\vec{S}_i, \vec{S}_j)$$

où $\vec{r}_{ij}$ est le rayon vecteur moyen joignant les spins i et j, $\delta\vec{r}_{ij}$ le déplacement, $K(\vec{r}_{ij})$ la constante de couplage entre spins et $f(\vec{S}_i, \vec{S}_j)$ une fonction dépendant de la nature de ce couplage. Le couplage spins-phonons existera alors si $\mathcal{H}_{int}$ peut induire des transitions entre les différents états de spin du système. C'est ce type de mécanisme qu'avait décrit Waller[19] dans le cas des ions paramagnétiques, en considérant la modulation de l'énergie d'interaction dipolaire entre spins. Les autres formes d'interactions que l'on peut prendre en compte dans un tel processus sont principalement : interaction par l'intermédiaire du champ des phonons[20] (qui est un phénomène du second ordre) et interactions d'échange, en particulier dans les composés magnétiques concentrés.

Un autre mécanisme de couplage spins-phonons résulte d'une interaction indirecte par l'intermédiaire du couplage spin-orbite (mécanisme de Van Vleck)[21]. Il peut être schématisé de la manière suivante : les vibrations du réseau modulent le champ cristallin dans lequel se trouve placé l'ion magnétique, ce qui modifie les orbites électroniques de cet ion ; l'effet sur le spin se fait sentir par l'intermédiaire du couplage spin-orbite. L'hamiltonien de couplage résultant de ce mécanisme s'écrit d'une manière générale :

$$\mathcal{H}_{int} = \sum_{i} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} G_{\alpha\beta\gamma\delta} \, S^i_\alpha \, S^i_\beta \, \varepsilon_{\gamma\delta} \qquad (S > 1/2)$$

où S^i_α et S^i_β sont deux composantes du spin considéré, $\varepsilon_{\gamma\delta}$ une composante du tenseur de déformation et $G_{\alpha\beta\gamma\delta}$ un élément du tenseur de couplage magnétoélastique ; la forme de ce dernier tenseur est déterminée entièrement par la symétrie du site de l'ion magnétique considéré.

Dans les composés paramagnétiques dilués, on a pu montrer que le mécanisme de Van Vleck était en général prédominant, et aucune expérience de résonance acoustique n'a permis de mettre en évidence un couplage par le mécanisme de Waller. Dans les magnétiques concentrés (ferro, ferri ou antiferromagnétiques), le mécanisme de Van Vleck et la modulation de l'énergie d'échange doivent être pris en compte pour expliquer les phénomènes observés dans différentes conditions. La prédominance d'un type de couplage par rapport à l'autre sera déterminée par des considérations d'ordre de grandeur et de symétrie :

- si on connaît la valeur des constantes de couplage, on peut calculer $\mathcal{H}_{int}$ et déterminer quantitativement l'influence de $\mathcal{H}_{int}$ sur la grandeur mesurée.

- les opérateurs de spin qui interviennent dans $\mathcal{H}_{int}$ ne sont pas les mêmes pour chaque type de couplage, donc les transitions induites peuvent être différentes ; ils dépendent de plus, dans chaque cas particulier, des propriétés de symétrie du cristal. Autrement dit, les règles de sélection sont en général différentes pour différents mécanismes de couplage.

I-2 . *Effets physiques liés aux interactions spins-phonons.*

Nous nous intéressons ici aux corps magnétiques concentrés. En ce qui concerne les effets statiques, on sait que la magnétostriction conduit à une distortion spontanée d'un cristal lors de l'apparition d'un ordre magnétique à grande distance, et à une modification de certaines constantes élastiques[22] ainsi que de certains coefficients de dilatation[23]. Les propriétés magnétiques statiques sont bien sûr, elles aussi, affectées par l'existence de la magnétostriction qui joue par exemple comme une contribution supplémentaire à l'anisotropie. La magnétostriction peut être à l'origine de certains effets spectaculaires tels que le changement de la nature d'une transition.[24]

Les effets du couplage spins-phonons sur les propriétés dynamiques du cristal résultent de tous les processus d'interaction entre les phonons et les grandeurs dynamiques caractéristiques du système de spin (ondes de spin ou modes de diffusion de l'aimantation). On peut citer en particulier :

-la modification des lois de dispersion des phonons et des magnons au voisinage de leur point de croisement, qui traduit l'existence d'ondes magnétoélastiques[25,26]. Ce phénomène résulte d'une interaction résonnante entre un phonon et un magnon.

- la relaxation des magnons par les phonons thermiques, qui met généralement en jeu un phonon et deux magnons. Plusieurs calculs ont été faits à ce sujet[27-29].

- le couplage des ultrasons avec les fluctuations critiques au voisinage des points de transition de phase. Un grand nombre d'études tant théoriques qu'expérimentales ont été développées à ce sujet ces dernières années.

- la modification de certains coefficients de transport, en particulier de la conductibilité thermique[30].

Sauf au voisinage immédiat des points de croisement des courbes de dispersion des phonons et des magnons, on considère en général que les modes propres magnétiques et élastiques du cristal sont les mêmes que ceux que l'on peut décrire en l'absence de couplage, ce couplage étant considéré comme une faible perturbation par rapport aux énergies mises en jeu.

I-3. *Méthodes d'étude des interactions phonons-magnons.*

L'étude de différents effets physiques cités au paragraphe précédent peut servir à obtenir des renseignements sur les interactions phonons-magnons. Dans tous les cas, la grandeur mesurée doit être fonction du couplage entre les phonons et les magnons, et il est en général utile de pouvoir la faire varier en modifiant les paramètres extérieurs (champ magnétique et température).

a - Méthode ultrasonore

Elle consiste à envoyer dans le cristal une onde ultrasonore et à mesurer les variations d'atténuation ou de vitesse de phase lorsqu'on modifie le couplage phonons-magnons. Les processus qui interviennent de manière notable sont ceux qui mettent en jeu deux ondes (1 phonon et 1 magnon) ou trois ondes (1 phonon et 2 magnons).

Les processus à trois ondes (1 phonon + 1 magnon → 1 magnon) consistent à induire , à l'aide d'ultrasons, des transitions entre deux modes de magnons. Ces transitions peuvent se faire entre deux branches de courbe de dispersion des ondes de spin ; ce phenomène résonnant est tout à fait analogue à la résonance paramagnétique acoustique. Nous savons que ce processus intervient en particulier dans les composés antiferromagnétiques lorsqu'on lève la dégénérescence des ondes de spin par l'application d'un champ magnétique[2] . Des transitions peuvent avoir lieu aussi entre deux points de la même branche de courbe de dispersion ; ce processus est non résonnant dans la mesure où la courbe de dispersion se déplace sans se déformer sous l'action d'un paramètre extérieur, ce qui est le cas par exemple lorsqu'on applique un champ magnétique parallèlement à l'axe de facile aimantation d'un antiferromagnétique, pourvu que ce champ ne soit pas trop fort.

Dans tous ces processus à trois ondes, on doit noter que la température joue un grand rôle, car l'efficacité dépend essentiellement de la population thermique du niveau de spin le plus bas. On conçoit alors bien qu'ils puissent être très importants au voisinage des transitions de phase où la fréquence d'un mode d'onde de spin tend vers zéro, donc sa population augmente notablement.

Il est possible aussi d'obtenir deux magnons à partir d'un phonon (1 phonon → 2 magnons), transition qui en général ne pourra être importante qu'au voisinage des points de changement de phase pour des raisons de conservation de l'énergie.

Les processus à deux ondes (1 phonon → 1 magnon) consistent à peupler directement avec des phonons un mode d'onde de spin dont la fréquence et le vecteur d'onde sont les mêmes que ceux de l'onde ultrasonore. La température ici ne joue pas sur l'efficacité du mécanisme, du moins tant que l'on atteint pas le régime de saturation. Cette saturation possible résulte du mécanisme suivant : la population d'un mode de magnon ne pouvant augmenter indéfiniment (parce que peupler un magnon, c'est diminuer l'aimantation et que cette aimantation est finie), si les magnons crées ne relaxent pas assez rapidement, on peut atteindre un régime d'engorgement des magnons (bottleneck) analogue au phénomène d'engorgement des phonons, bien connu dans les études de la relaxation spin-réseau directe.

Pour ces processus à deux ou trois ondes, l'atténuation ultrasonore observée (largeur, intensité, forme de la raie) dépend toujours de la température, parce que la température influe sur la valeur du temps de relaxation du mode excité. Les mesures se font en général en fonction d'un champ magnétique appliqué à température fixe. Elles permettent d'accéder à plusieurs paramètres : les règles de sélection disent quel(s) mécanisme(s) intervient, et peuvent dans certains cas, comme nous le verrons plus loin, donner des renseignements sur l'orientation des spins ; la mesure de l'atténuation permet la détermination des constantes de couplage magnétoélastique, ainsi que du temps de relaxation des ondes de spin ; en modifiant la température, on peut connaître la loi de variation de ce temps de relaxation en fonction de la température ; enfin, il est possible d'obtenir des renseignements sur les fréquences des ondes de spin et accéder ainsi à certains paramètres magnétiques du cristal.

Les mesures de variations de vitesse de phase des ondes ultrasonores donnent des informations sur l'influence du couplage phonons-magnons sur la valeur des constantes élastiques. Elles permettent, comme les mesures d'atténuation, d'évaluer les constantes de couplage magnétoélastique.

b - Résonance électronique et pompage parallèle.

Ces deux méthodes consistent à exciter un mode propre à caractère magnétique d'un cristal (onde de spin ou onde magnéto-élastique), à l'aide d'un champ magnétique hyperfréquence. Dans le cas de la résonance (ferro, ferri ou antiferromagnétique), le mode excité est le mode uniforme (k = 0) ; par le pompage parallèle, ce sont deux modes de même fréquence et de vecteurs d'onde opposés (et en général différents de zéro) qui se trouvent excités simultanément. On a accès dans les deux cas au temps de relaxation du mode excité, en mesurant la largeur de raie dans le cas de la résonance, et le champ hyperfréquence critique dans le cas du pompage parallèle. On peut alors essayer de déterminer la contribution des interactions magnons-phonons à ce temps de relaxation, par exemple en faisant des mesures en fonction de la température.

Des calculs théoriques ont été effectués afin de déterminer le temps de relaxation des magnons vers le réseau et sa loi de dépendance en fonction de la température. Ils mettent en jeu des processus à trois ondes :

1 1 phonon + 1 magnon → 1 magnon
2 1 magnon + 1 magnon → 1 phonon
3 1 magnon → 1 magnon + 1 phonon

Le calcul montre par exemple que, à basse température, le temps de relaxation spin-réseau dans un antiferromagnétique varie en T^{-5} [28]. En fait, ce type de loi est difficile à vérifier car, lorsqu'on excite un mode d'onde de spin particulier, celui-ci relaxe en général beaucoup plus vite vers les autres modes de magnons que vers le réseau[6]. Nous pouvons citer cependant quelques cas où la contribution du processus 1 magnon + 1 phonon → 1 magnon au temps de relaxation des ondes de spin a pu être mise en évidence : c'est le cas du YIG dans lequel certains auteurs[31] ont trouvé un temps de relaxation qui variait en $\frac{1}{T}$ pour $T < 350°K$, en accord avec le calcul fait en tenant compte du processus

considéré ; c'est le cas aussi de EuIG dans lequel les variations de la largeur de raie de résonance électronique en fonction de la température ont pu être expliquées par un processus de relaxation faisant intervenir un magnon optique et un phonon optique[29].

L'expérience qui consiste à exciter des ondes magnétoélastiques par pompage parallèle donne des renseignements intéressants sur le couplage phonons-magnons : elle permet en particulier, en mesurant la valeur du champ hyperfréquence critique en fonction du champ appliqué, de déterminer les valeurs des constantes de couplage spins-phonons[32,33].

c - Mesures de conductibilité thermique.

Le couplage résonnant entre les phonons et les magnons modifie sensiblement leurs lois de dispersion au voisinage de leur point de croisement. Toute propriété du cristal qui dépend des lois de dispersion, soit d'une manière directe, soit par l'intermédiaire d'un facteur de population qui pour chaque mode de phonons ou de magnons s'écrit sous la forme

$$\langle a_k^+ a_k \rangle = \frac{1}{\exp \frac{\hbar\omega(k)}{k_B T} - 1}$$

est donc affectée par le couplage. Cet effet n'est évidemment mesurable que si le couplage est assez fort et si, dans l'expression de la grandeur physique considérée, la contribution provenant des vecteurs d'onde k qui sont voisins des points de croisement, n'est pas négligeable ; cela implique des conditions assez restrictives sur la nature du cristal et les domaines de champ magnétique et de température dans lesquels l'effet est observable.

C'est ainsi par exemple que la conductibilité thermique d'un composé magnétique dépend du couplage phonons-magnons. Elle s'écrit en effet :

$$K = \sum_{ik} \frac{\partial \omega_{ik}}{\partial k} \ell_{ik} \hbar\omega_{ik} \frac{\partial n_{ik}}{\partial T}$$

où i est un indice qui indique la nature du mode qui assure la conduction de l'énergie thermique (phonons, magnons ou mode magnétoélastique), ω représente la pulsation de ce mode, ℓ son libre parcours moyen, et n_{ik} son facteur de population pour le vecteur d'onde k($n_{ik} = \langle a^{+}_{ik} a_{ik} \rangle$).

L'influence du couplage résonnat phonons-magnons sur la conductibilité thermique du YIG à basse température a été mise en évidence résemment[34], en mesurant cette conductibilité en fonction d'un champ magnétique appliqué. Les variations de la conductibilité thermique de $FeCl_2$[35] en fonction de la température pour $T < T_N$ ont pu être expliquées par le même mécanisme. Les mesures faites permettent de déduire des valeurs de constantes de couplage magnétoélastique d'un bon ordre de grandeur.

3 - Mesures de grandeurs thermodynamiques statiques.

Le raisonnement schématisé au paragraphe précédent s'applique à un certain nombre de grandeurs statiques d'un cristal magnétique.

On a ainsi pu expliquer les variations "anormales" d'aimantation et de susceptibilité mesurées à basse température dans $CuCl_2\ 2H_2O$, CoF_2 et FeF_2[36]. Notons toutefois que les valeurs des constantes de couplage magnétoélastique qui en sont déduites paraissent relativement grandes (10^3 à 10^4 cm^{-1}).

Il devrait être possible aussi de mettre en évidence une influence du couplage résonnant phonons-magnons sur la valeur de la chaleur spécifique, qui est donnée par :

$$C = \frac{\partial}{\partial T} \sum_{ik} \hbar\omega_{ik}\ n_{ik}$$

où les notations sont les mêmes que précédemment. A notre connaissance, aucune mesure n'a été faite en ce sens. Les renseignements que l'on

pourrait en tirer au sujet du couplage phonons-magnons sont les mêmes que ceux que l'on déduit des mesures de conductibilité thermique, mais les paramètres qui interviennent dans cette dernière méthode (en particulier effets de forme et impuretés) et au sujet desquels on est obligé de faire des approximations, n'ont pas d'influence ici.

CHAPITRE II

PROPRIETES DES COMPOSES ANTIFERROMAGNETIQUES

Nous nous intéressons ici aux propriétés générales des composés antiferromagnétiques qui peuvent être décrits par un modèle simple à deux sous réseaux identiques. Après avoir écrit l'hamiltonien du sytème de spins, nous parlerons des propriétés statiques et dynamiques dans la limite des basses températures ($\frac{T}{T_N} \ll 1$), c'est-à-dire que nous montrerons comment on détermine le diagramme de phase (H,T), ainsi que les lois de dispersion des ondes de spin dans les différentes phases. Nous nous intéresserons plus spécialement au cas où le champ magnétique extérieur est parallèle à l'axe de facile aimantation. Nous ferons ensuite quelques commentaires au sujet de la transition spin-flop.

II-1 . *Hamiltonien du système magnétique.*

Nous prendrons comme contributions à l'énergie du système de spins :

- Une énergie d'échange, caractérisée par une constante J ou un champ d'échange H_E. Nous ne prendrons en compte que l'interaction entre premiers voisins n'appartenant pas au même sous-réseau.

- Une énergie d'anisotropie uniaxiale, qui détermine l'orientation des spins en champ nul et est caractérisée par une constante K ou un champ H_A. Nous supposerons que $H_A < H_E$.

- Une énergie d'anisotropie dans le plan perpendiculaire à l'axe de facile aimantation ; cette anisotropie détermine le plan

dans lequel se trouvent les spins dans la phase floppée. Elle est caractérisée par K_1 ou H_{A1}. Nous supposerons que $H_{A1} << H_A$.

- Une anisotropie d'échange caractérisée par K_2 ou H_{A2}.
- Une énergie Zeeman qui provient de l'application d'un champ magnétique extérieur H.

L'hamiltonien s'écrit donc :

$$\mathcal{H} = 2 \sum_{\ell,m} J \vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m - K \left[\sum_\ell S_Z^{\ell 2} + \sum_m S_Z^{m 2} \right] - K_1 \left[\sum_\ell S_X^{\ell 2} + \sum_m S_X^{m 2} \right] + K_2 \sum_{\ell,m} S_Z^\ell \, S_Z^m$$

$$- g\mu_B \vec{H} \left[\sum_\ell \vec{S}_\ell + \sum_m \vec{S}_m \right]$$

où les indices ℓ et m sont relatifs à chacun des deux sous-réseaux magnétiques. Il n'a été tenu compte que d'une seule interaction d'échange J, c'est-à-dire que de l'échange entre premiers voisins. L'axe Z est l'axe de facile aimantation en champ nul, et X l'axe de facile aimantation dans le plan XY.

Le champ d'échange et les différents champs d'anisotropie sont définis par :

$$H_E = \frac{2SzJ}{g\mu_B} \qquad H_A = \frac{2SK}{g\mu_B} \qquad H_{A1} = \frac{2SK_1}{g\mu_B} \qquad H_{A2} = \frac{zSK_2}{g\mu_B}$$

où z représente le nombre de premiers voisins magnétiques.

II-2 . *Propriétés statiques.*

Décrire les propriétés statiques du système, c'est écrire que ce système se trouve en équilibre, c'est-à-dire que pour une orientation et une valeur quelconques du champ magnétique on doit avoir les

deux conditions suivantes simultanément remplies :

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_1} = 0$$

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_2} = 0$$

où E est l'énergie magnétique et θ_1, θ_2 les angles entre l'aimantation de chaque sous-réseau et l'axe de facile aimantation. Pour que cet équilibre soit stable, on doit de plus avoir :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1^2} \quad \frac{\partial^2 E}{\partial \theta_2^2} - \left[\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_1 \, \partial \theta_2} \right]^2 > 0$$

Remarque : les conditions écrites supposent que les positions d'équilibre des aimantations sont définies chacune par un seul angle. Ceci n'est vrai en toute rigueur, pour une orientation quelconque du champ magnétique, que si l'anisotropie dans le plan (H_{A1}) est nulle. En pratique, l'existence de cette anisotropie a une influence négligeable sur les propriétés statiques, dans la mesure où $H_{A1} \ll H_A$. Par la suite, nous supposerons pour simplifier l'écriture que le champ magnétique appliqué se trouve dans le plan XZ, ce qui implique que les aimantations s'y trouvent aussi et peuvent être repérées chacune par un seul angle.

Certains auteurs[3½,3½] ont calculé les orientations des aimantations des sous-réseaux magnétiques pour H quelconque dans le plan XZ. Le résultat obtenu est schématisé sur la figure 1. La ligne fermée ABCD représente la courbe de transition vers la phase paramagnétique saturée. Les aires hachurées sont des zones dans lesquelles la minimisation de l'énergie conduit à deux configurations possibles pour les directions des aimantations, l'une étant stable et l'autre

métastable ; les lignes en pointillés représentent les points où les énergies des deux configurations sont égales.

Nous nous intéressons ici plus particulièrement à ce qui se passe sur l'axe OH c'est-à-dire lorsque le champ magnétique est appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation du cristal. Suivant les valeurs du champ magnétique, le cristal se trouve dans la phase antiferromagnétique ($\theta_1 = 0$, $\theta_2 = \pi$), dans la phase floppée ($\theta_1 = -\theta_2 = \theta$) ou dans la phase paramagnétique ($\theta_1 = \theta_2 = 0$). Dans ce modèle, la transition spin-flop est du premier ordre et doit présenter une hystérésis en champ magnétique ; elle ne se produit que si le champ ne fait pas un angle trop grand avec l'axe de facile aimantation et il existe un point critique pour cette transition, si bien que le passage de la phase antiferromagnétique à la phase floppée peut se réaliser de manière continue. On définit ainsi les champs de transition :

$$H_{C1} = H_{\text{antiferro} \rightarrow \text{flop}} = \left[2H_E(H_A - H_{A1} + H_{A2}) + (H_A - H_{A1} + H_{A2})^2\right]^{1/2} \simeq \sqrt{2H_E H_A + H_A^2}$$

$$H_{C2} = H_{\text{flop} \rightarrow \text{antiferro}} \quad \frac{2H_E - H_A + H_{A1} + H_{A2}}{2H_E + H_A - H_{A1} + H_{A2}} H_{C1} \simeq \frac{2H_E - H_A}{2H_E + H_A} \sqrt{2H_E H_A + H_A^2}$$

$$H_{C3} = H_{\text{thermodynamique}} = \sqrt{H_{C1} H_{C2}} \qquad \simeq \sqrt{2H_E H_A - H_A^2}$$

L'angle maximum entre H et l'axe z pour lequel la transition spin-flop existe a été calculé[3] et vaut approximativement :

$$\theta \simeq 2\theta' \times \frac{H_A}{H_E}$$

Pour H parallèle à Z dans la phase floppée, l'angle θ est donné par :

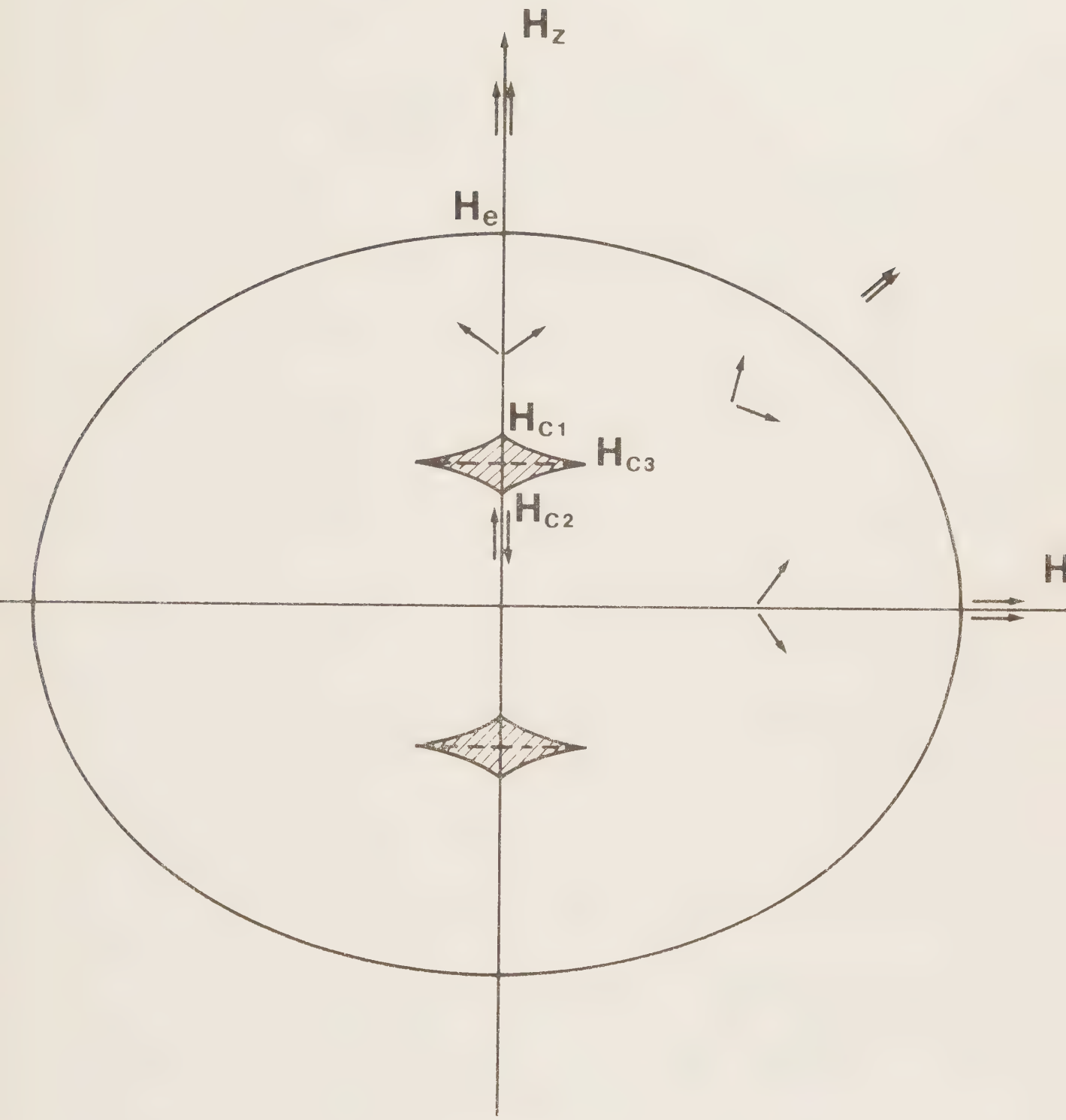


FIGURE 1 Domaines de stabilité des différentes phases magnétiques dans le plan H_x H_z. Les flèches indiquent les directions approximatives des aimantations de chaque sous-réseau.

$$\cos\theta = \frac{H}{2H_E - H_A + H_{A1} + H_{A2}}$$

La transition vers la phase paramagnétique se produit lorsque $\cos\theta = 1$ c'est-à-dire pour $H = H_{..} = 2H_E - H_A + H_{A1} + H_{A2}$. cette valeur est peu sensible à l'orientation du champ magnétique par rapport à l'axe Z.

Lorsque la température varie, l'aimantation varie ainsi que les champs d'échange et d'anisotropie, donc les différents champs de transition sont fonction de la température, ce qui permet de tracer un diagramme de phase dans le plan (H,T) (Fig.2). Ce diagramme de phase est en général difficilement calculable théoriquement. On peut cependant faire les remarques suivantes :

- la ligne de séparation entre la phase floppée et la phase paramagnétique est une courbe de Brillouin dans l'approximation du champ moléculaire.

- la forme de la ligne de séparation entre les phases antiferromagnétique et floppée est difficile à déterminer de manière théorique car elle résulte de l'influence de la température à la fois sur les paramètres magnétiques statiques (champs d'échange et d'anisotropie) et sur l'action du champ magnétique extérieur. En général, cette courbe se trouve être presque horizontale, et,dans la plupart des antiferromagnétiques usuels, le champ de spin-flop tend à augmenter lorsque la température augmente ; l'étude de cette ligne de transition peut donner dans certains cas des renseignements sur l'origine de l'anisotropie.

- près de T_N, la ligne de séparation antiferro-para part avec une pente verticale, comme l'indique la théorie des transitions de phase, et comme l'ont vérifié bon nombre d'expérimentateurs.

- ce diagramme comporte toujours un point triple.

II-3 . *Propriétés dynamiques - Ondes de spin.*

Dans chacune des phases magnétiques précédemment définies, il est possible de calculer le spectre des excitations élémentaires du système de spins, en cherchant les mouvements propres de l'aimantation autour de sa position d'équilibre. Plusieurs méthodes sont utilisables pour calculer les lois de dispersion des ondes de spin, en particulier: équations du mouvement pour les opérateurs de spin [9], diagonalisation de l'hamiltonien par une transformation du type Bogoliubov [7,8], fonction de Green [7,3]. Nous emploierons ici des transformations du type Bogoliubov, car cette méthode est la plus pratique pour écrire ensuite le couplage avec les ultrasons, en déduire les règles de sélection pour le couplage ultrasons-ondes de spin, et calculer l'atténuation ultrasonore.

a - Ondes de spin dans la phase antiferromagnétique

Les transformations à effectuer sur l'hamiltonien du système de spin pour trouver les lois de dispersion des ondes de spin dans la phase antiferromagnétique sont les suivantes :

$$S_x = \frac{1}{2}(S_+ + S_-) \qquad S_y = \frac{1}{2i}(S_+ - S_-)$$

$$\begin{cases} S_+^\ell = (2S)^{1/2}\left(1 - \dfrac{b_\ell^+ b_\ell}{2S}\right)^{1/2} b_\ell \simeq (2S)^{1/2}\, b^\ell = \left(\dfrac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}_\ell}\, b_k \\ S_-^\ell = (2S)^{1/2}\, b_\ell^+ \left(1 - \dfrac{b_\ell^+ b_\ell}{2S}\right)^{1/2} \simeq (2S)^{1/2}\, b_\ell^+ = \left(\dfrac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_\ell}\, b_k^+ \\ S_z^\ell \quad S - b_\ell^+ b_\ell = S - \sum_{k,k'} e^{i(k-k')R_\ell}\, b_k^+ b_{k'} \end{cases}$$

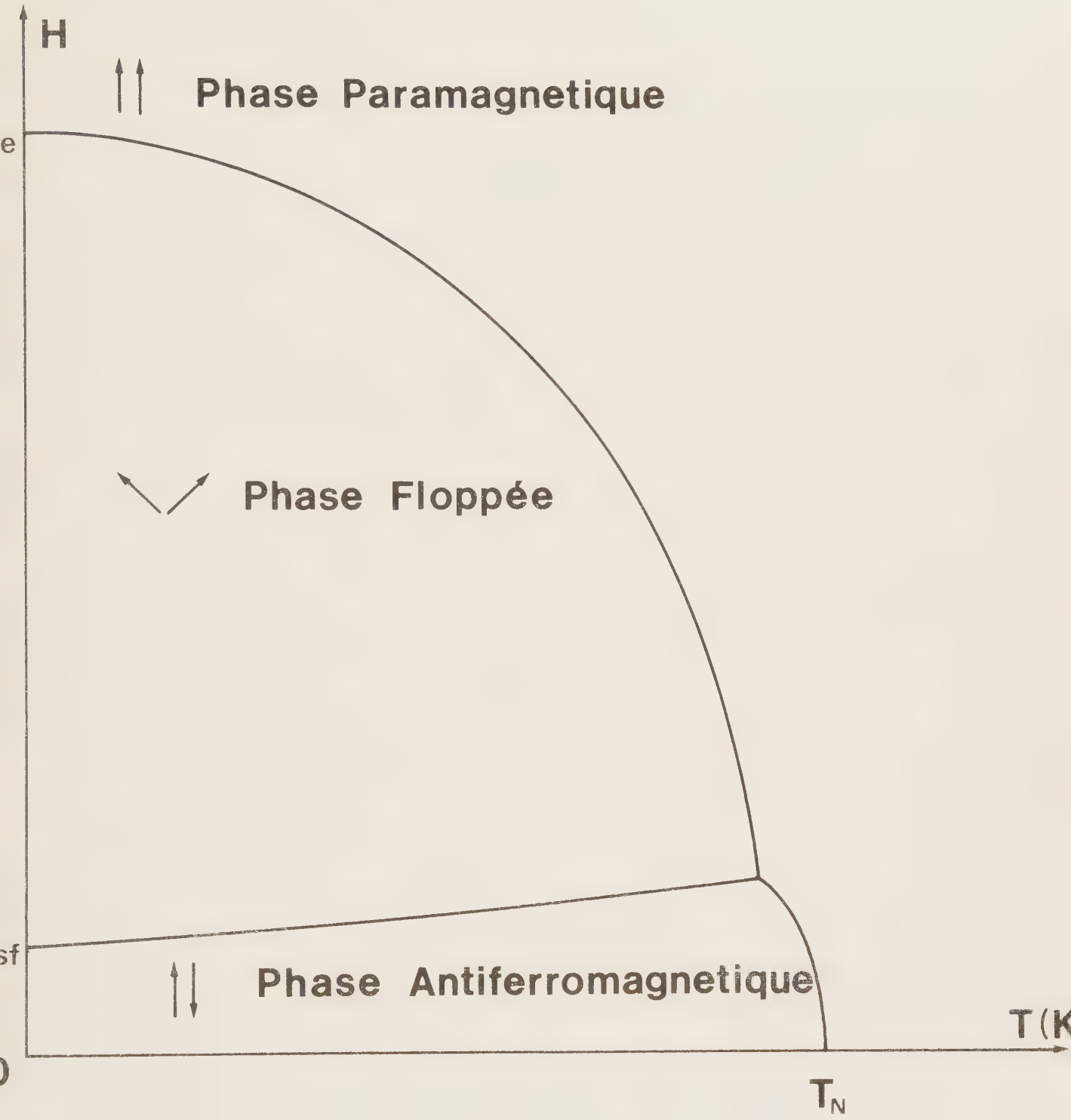


FIGURE 2 Diagramme de phase d'un antiferromagnétique à deux sous réseaux avec $H_A < H_E$, en présence d'un champ magnétique extérieur H appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation.

$$\begin{cases} S_+^m = (2S)^{1/2}\left(1 - \dfrac{c_m^+ c_m}{2S}\right)^{1/2} c_m \simeq (2S)^{1/2}\, c_m = \left(\dfrac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_m}\, c_k \\ S_-^m = (2S)^{1/2}\, c_m^+ \left(1 - \dfrac{c_m^+ c_m}{2S}\right)^{1/2} \simeq (2S)^{1/2}\, c_m^+ = \left(\dfrac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}_m}\, c_k^+ \\ S^m = S - c_m^+ c_m = S - \sum_{k,k'} e^{-i(k-k')\cdot} \, c_{k'}^+ c_k \end{cases}$$

Le passage aux opérateurs de création et d'annihilation de magnons permet de mettre $\mathcal{H}$ sous la forme :

$$\mathcal{H} = \quad + \sum_k \hbar\omega_\alpha(k)\left(\alpha_k^+\alpha_k + \frac{1}{2}\right) + \sum_k \hbar\omega_\beta(k)\left(\beta_k^+\beta_k + \frac{1}{2}\right)$$

α et β obéissent aux règles de commutation des opérateurs de bosons et sont définis par :

$$b_k = \alpha_k \operatorname{ch}\theta_k + \beta_k^+ \operatorname{sh}\theta_k$$

$$c_k = \alpha_k^+ \operatorname{sh}\theta_k + \beta_k \operatorname{ch}\theta_k$$

on doit avoir :

$$\operatorname{th} 2\theta_k = \frac{-H_E\,\gamma_k}{H_E + H_A - H_{A1} + H_{A2}} \simeq \frac{-H_E\gamma_k}{H_E + H_A}$$

avec $\gamma_k = \dfrac{1}{z} \sum_{\vec{\delta}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{\delta}}$ où $\vec{\delta}$ est un vecteur joignant un atome magnétique à un de ses premiers voisins antiparallèles. Si a représente la distance entre ces atomes, et pour un arrangement cubique des atomes magnétiques, on a lorsque $ka \ll 1$: $\gamma_k \simeq 1 - \dfrac{1}{6}(ka)^2$.

Les fréquences d'onde de spin sont données par :

$$\hbar\omega_\alpha(k) = g\mu_B \left[(H_E+H_A - H_{A1}+H_{A2})^2 - H_E^2\gamma_k^2 \right]^{1/2} + g\mu_B H$$

$$\hbar\omega_\beta(k) = g\mu_B \left[(H_E+H_A - H_{A1}+H_{A2})^2 - H_E^2\gamma_k^2 \right]^{1/2} - g\mu_B H$$

Leurs principales propriétés sont les suivantes :

- en champ magnétique nul, les deux modes d'onde de spin sont dégénérés, et il existe un gap à k = 0 ($\omega(k=0) = 0$). La dégénérescence est liée à l'identité des deux sous-réseaux, l'existence du gap à la présence d'anisotropie.

- l'application d'un champ magnétique parallèle à l axe d'aimantation lève la dégénérescence des ondes de spin et les courbes de dispersion se déplacent symétriquement par rapport à la courbe en champ nul. Avec les conventions prises ici, c'est le mode β qui se trouve être le mode de basse fréquence en champ magnétique et α celui de haute fréquence. Lorsque H croît, le mode β devient instable quand $\omega_\beta(k=0) = 0$, ce qui définit le champ de transition :

$$H_C = \left[(H_E+H_A-H_{A1}+H_{A2})^2 - H_E^2 \right]^{1/2}$$

qui n'est autre que le champ H_{C1} défini plus haut.

- les courbes de dispersion sont quadratiques en k pour les très faibles valeurs de k, puis linéaires en k. On peut écrire en pratique :

$$\omega_{\alpha,\beta} = \omega^0_{\alpha,\beta} + Ak^2 \quad \text{pour} \quad (ka)^2 < \frac{H_A}{H_E}$$

$$\omega_{\alpha,\beta} \quad \omega^{0'}_{\alpha,\beta} + Bk \quad \text{pour} \quad (ka)^2 > \frac{H_A}{H_E}$$

Exemples :

MnF_2 : loi quadratique pour $(ka)^2 < 1{,}5\ 10^{-2}$, linéaire pour $(ka)^2 > 1{,}5\ 10^{-2}$

Cr_2O_3 : loi quadratique pour $(ka)^2 < 3.10^{-4}$, linéaire pour $(ka)^2 > 3.10^{-4}$

$GdAlO_3$: loi quadratique pour $(ka)^2 < 0{,}2$, linéaire pour $(ka)^2 > 0{,}2$

Remarque : ceci n'est vrai que si ka n'est pas trop grand, c'est-à-dire tant que l'on peut se contenter du développement $e^{ika} \simeq 1 - \frac{(ka)^2}{2}$. Lorsqu'on examine des proprétés dans toute la zone de Brillouin, il faut alors prendre l'expression générale de γ_k qui, par exemple pour un réseau cubique simple s'écrit :

$$\gamma_k = \frac{1}{3}\left[\cos k_x a + \cos k_y a + \cos k_z a\right]$$

Des courbes de dispersion dans la phase antiferromagnétique seront tracées par la suite dans le cas de $GdAlO_3$.

b - Ondes de spin dans la phase floppée.

La configuration des spins dans la phase floppée est représentée sur la figure 3.

L'hamiltonien magnétique s'écrit :

$$\mathcal{H} = 2 \sum_{\ell m} J\, \vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m - g\mu_B H \left(\sum_\ell S_Z^\ell + \sum_m S_Z^m \right) - K \left(\sum_\ell S_Z^{\ell 2} + \sum_m S_Z^{m 2} \right)$$

$$- K_1 \left(\sum_\ell S_X^{\ell 2} + \sum_m S_X^{m 2} \right) + K_2 \sum_{\ell m} S_Z^\ell S_Z^m$$

Les composantes des spins dans le système d'axes XZ sont ensuite exprimées en fonction de composantes prises dans des systèmes d'axes liés à chaque sous-réseau par les relations suivantes :

$$S_X = \tilde{S}^{\ell}_x \cos\theta - \tilde{S}^{\ell}_z \sin\theta \qquad S^m_X = \tilde{S}^m_x \cos\theta + \tilde{S}^m_z \sin\theta$$

$$S_Y = \tilde{S}^{\ell}_y \qquad S^m_Y = \tilde{S}^m_y$$

$$S_Z = \tilde{S}^{\ell}_x \sin\theta + \tilde{S}^{\ell}_z \cos\theta \qquad S^m_Z = -\tilde{S}^m_x \sin\theta + \tilde{S}^m_z \cos\theta$$

On écrit ensuite l'hamiltonien en fonction des opérateurs b_k et c_k qui sont définis par :

$$\begin{cases} \tilde{S}^{\ell}_+ = (2S)^{1/2}\, b_\ell = \left(\frac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}_\ell}\, b_k \\ \tilde{S}^{\ell}_- = (2S)^{1/2}\, b^+_\ell = \left(\frac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_\ell}\, b^+_k \\ \tilde{S}^{\ell}_z = S - b^+_\ell\, b_\ell = S - \frac{2S}{N} \sum_{kk'} e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\cdot\vec{R}_\ell}\, b^+_k b_k \end{cases}$$

$$\begin{cases} \tilde{S}^m_+ = (2S)^{1/2}\, c_m = \left(\frac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}_m}\, c_k \\ \tilde{S}^m_- = (2S)^{1/2}\, c^+_m = \left(\frac{2S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_m}\, c^+_k \\ \tilde{S}^m_z = S - c^+_m\, c_m = S - \frac{2S}{N} \sum_{kk'} e^{i(\vec{k}-\vec{k}')\cdot\vec{R}_m}\, c^+_k c_{k'} \end{cases}$$

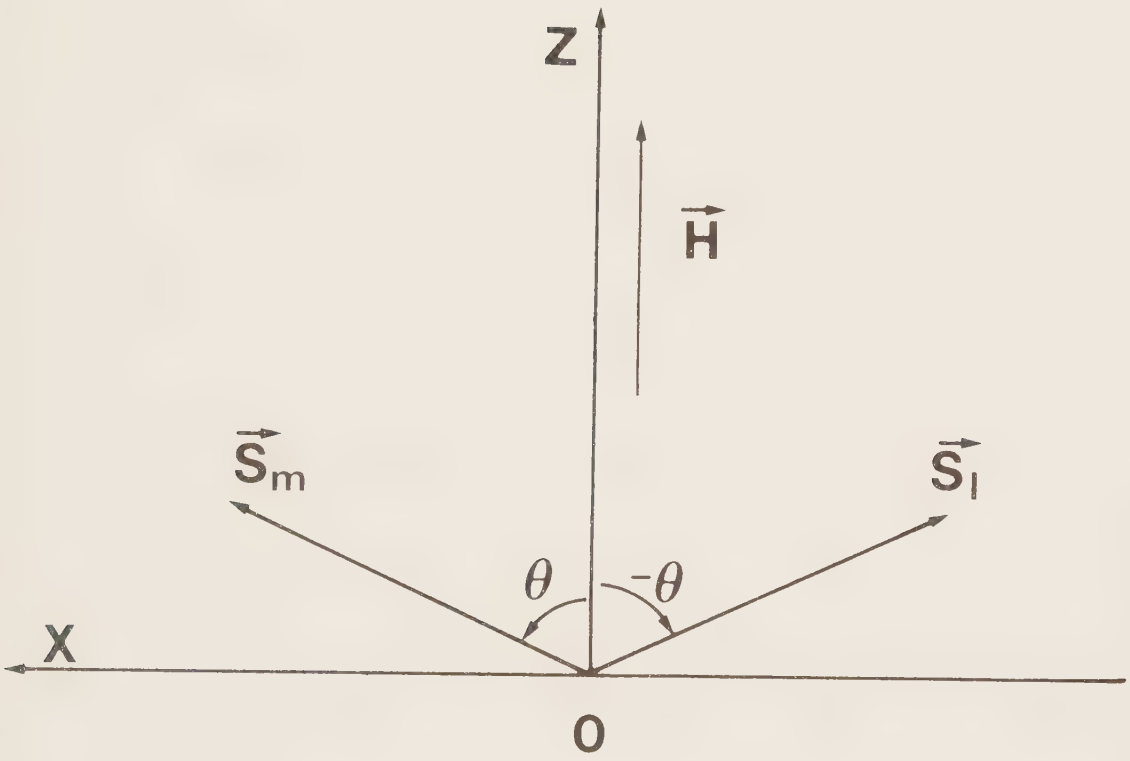


FIGURE 3 Configuration des spins dans la phase floppée.

En faisant la somme sur tous les sites magnétiques du cristal, et en tenant compte de la périodicité spatiale du réseau, l'hamiltonien s'écrit :

$$\mathcal{H} = A \sum_k (b_k^+ b_k + c_k^+ c_k) + B \sum_k (b_k b_{-k} + b_k^+ b_{-k}^+ + c_k c_{-k} + c_k^+ c_{-k}^+)$$

$$+ \sum_k \alpha_k (b_k c_{-k} + b_k^+ c_{-k}^+) + \sum_k \epsilon_k (b_k c_k^+ + b_k^+ c_k)$$

avec :

$$A = g\mu_B \left[H_E - \frac{H_A}{2} \sin^2\theta + \frac{H_{A1}}{2} (1 + \sin^2\theta) \right]$$

$$B = g\mu_B \left[\frac{H_A}{4} \sin^2\theta - \frac{H_{A1}}{4} \cos^2\theta \right]$$

$$\alpha_k = g\mu_B \left[- H_E \gamma_k \sin^2\theta - \frac{H_{A2}}{2} \gamma_k \sin^2\theta \right]$$

$$\epsilon_k = g\mu_B \left[H_E \gamma_k \cos^2\theta - \frac{H_{A2}}{2} \gamma_k \sin^2\theta \right]$$

Sous cette forme, l'hamiltonien peut être diagonalisé en introduisant des opérateurs de création et d'annihilation de magnons par une transformation du type de la transformation de Bogoliubov utilisée dans le cas de la phase antiferromagnétique :

$$b_k = \lambda_+ \alpha_k + \lambda_- \alpha_{-k}^+ + \mu_+ \beta_k + \mu_- \beta_{-k}^+$$

$$c_k = - \lambda_+ \alpha_k - \lambda_- \alpha_{-k}^+ + \mu_+ \beta_k + \mu_- \beta_{-k}^+$$

où $\lambda_\pm$ et $\mu_\pm$ sont définis par les relations :

$$\lambda_\pm = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(\lambda \pm \frac{1}{\lambda}\right) \qquad \mu_\pm = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(\mu \pm \frac{1}{\mu}\right)$$

avec

$$\lambda = \left(\frac{A-2B + d_k - e_k}{A+2B - d_k - e_k}\right)^{1/4}$$

$$\mu = \left(\frac{A-2B - d_k + e_k}{A+2B + d_k + e_k}\right)^{1/4}$$

L'hamiltonien s'exprime alors sous la forme :

$$\mathcal{H} = c^{te} + \sum_k \hbar\omega_1(k) \left(\alpha_k^+ \alpha_k + \frac{1}{2}\right) + \sum_k \hbar\omega_2(k) \left(\beta_k^+ \beta_k + \frac{1}{2}\right)$$

Il existe donc deux modes d'onde de spin distincts, dont les lois de dispersion sont données par :

$$\hbar\omega_1(k) = (A + 2B - d_k - e_k)^{1/2}(A - 2B + d_k - e_k)^{1/2}$$

$$\hbar\omega_2(k) = (A + 2B + d_k + e_k)^{1/2}(A - 2B - d_k + e_k)^{1/2}$$

soit, en utilisant les expressions de A, B, d_k et e_k calculées ci-dessus :

$$\hbar\omega_1(k) = g\mu_B\left[H_E(1-\gamma_k)+H_{A1}\right]^{1/2}\left[H_E(1-\gamma_k\cos\theta)-(H_A-H_{A1}-\gamma_k H_{A2})\sin^2\theta\right]^{1/2}$$

$$\hbar\omega_2(k) = g\mu_B\left[H_E(1+\gamma_k)+H_{A1}\right]^{1/2}\left[H_E(1+\gamma_k\cos\theta)-(H_A-H_{A1}+\gamma_k H_{A2})\sin^2\theta\right]^{1/2}$$

Il sera utile par la suite de connaître les expressions des fréquences d'ondes de spin à vecteur d'onde nul, c'est-à-dire pour $\gamma_k = 1$:

$$\hbar\omega_1(k = 0) = g\mu_B\sqrt{H_{A1}\,(2H_E-H_A+H_{A1}+H_{A2})}^{1/2}\sin\theta$$

$$\hbar\omega_2(k = 0) = g\mu_B(2H_E+H_{A1})^{1/2}\left[2H_E\cos^2\theta-(H_A-H_{A1}+H_{A2})\sin^2\theta\right]^{1/2}$$

L'allure des courbes de dispersion est représentée schématiquement sur la figure 4 pour différentes valeurs du champ magnétique dans le cas où H_{A1} est différent de zéro. Nous avons représenté sur la figure 5 les variations de $\omega_1(k=0)$ et de $\omega_2(k=0)$ en fonction du champ magnétique. Nous ferons les remarques suivantes :

- le mode β a pour toute valeur de k une fréquence relativement haute, sauf pour $k \simeq 0$ au voisinage du champ de spin-flop. Ce mode devient instable lorsque sa fréquence s'annule, ce qui se produit à $k = 0$ pour une valeur de champ magnétique donnée par :

$$H = \frac{2H_E-H_A+H_{A1}+H_{A2}}{2H_E+H_A-H_{A1}+H_{A2}}\left[2H_E(H_A-H_{A1}+H_{A2}) + (H_A-H_{A1}+H_{A2})^2\right]^{1/2}$$

c'est-à-dire le champ critique H_{C2} déterminé par des considérations statiques.

- le mode α a une fréquence à $k = 0$ qui est non nulle seulement si H_{A1} est différent de zéro, c'est-à-dire s'il existe une anisotropie dans le plan perpendiculaire à l'axe de facile aimantation. Cette anisotropie étant en général faible, la fréquence correspondante $(\omega_1(k=0))$ est relativement basse dans toute la phase floppée. Lorsque le champ magnétique augmente, cette fréquence s'annule pour une certaine valeur de H qui correspond au champ de transition de la phase floppée vers la phase paramagnétique :

$$\omega_1(k=0) = 0 \qquad H = H_e = 2H_E - H_A + H_{A1} + H_{A2}$$

Si l'anisotropie dans le plan est nulle ($H_{A1}=0$) la transition vers la phase paramagnétique est déterminée par la condition $\left(\frac{d\omega_1}{dk}\right)_{k=0} = 0$, ce qui donne le même résultat ($H = 2H_E - H_A + H_{A2}$)

2 - Ondes de spin dans la phase paramagnétique.

Dans la phase paramagnétique saturée, les deux sous-réseaux magnétiques sont identiques, et l'on peut écrire :

$$S_+^{\ell} = S_+^{m} = (2S)^{1/2} b = \left(\frac{S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} b_k$$

$$S_-^{\ell} = S_-^{m} = (2S)^{1/2} b^+ = \left(\frac{S}{N}\right)^{1/2} \sum_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}} b_k^+$$

$$S_Z^{\ell} = S_Z^{m} = S - b^+ b$$

On obtient alors un mode d'onde de spin dont la fréquence est donnée par :

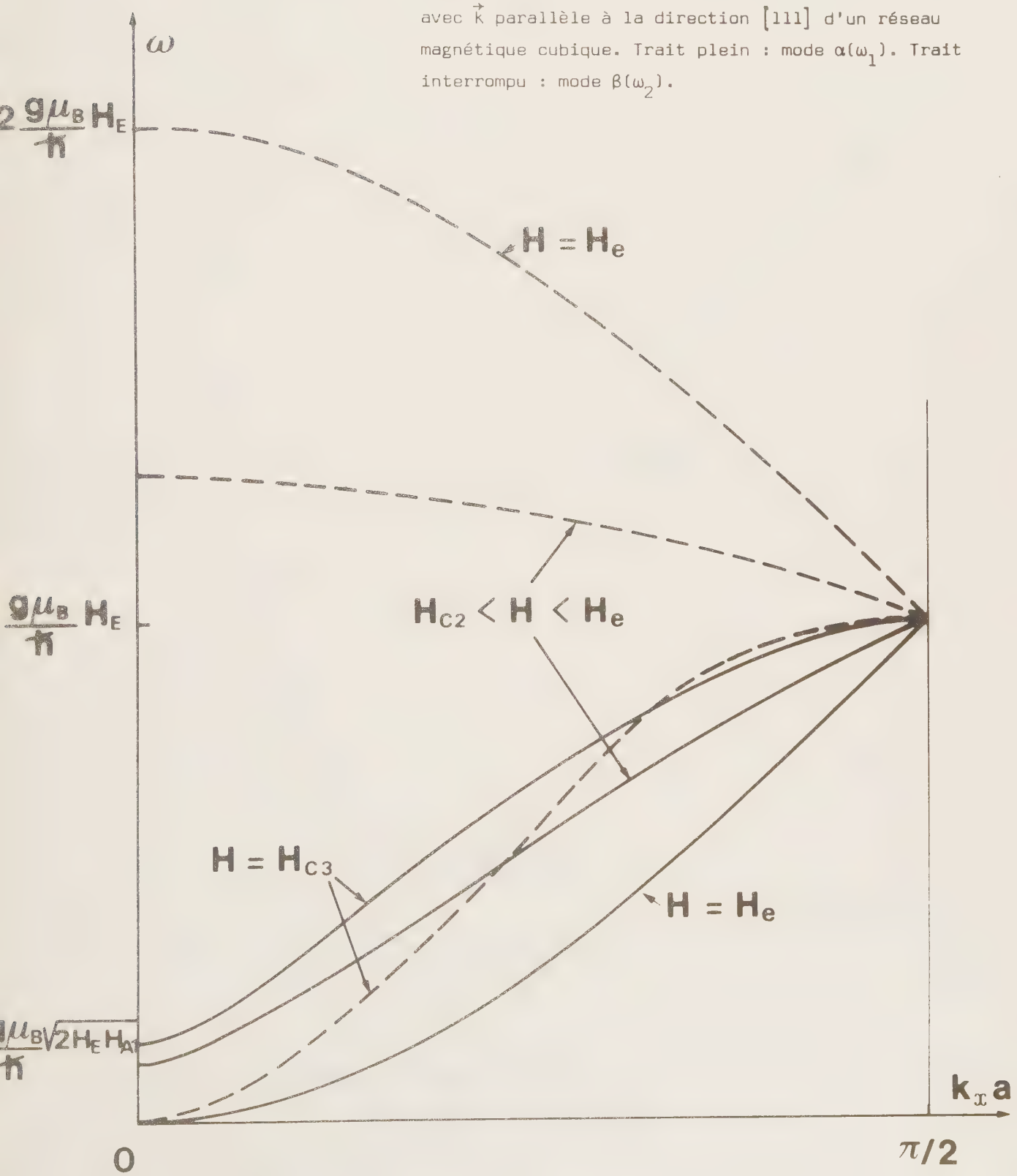
$$\hbar\omega = 2g\mu_B \left[H_E(\gamma_k - 1) + H_A - H_{A1} - H_{A2} + H \right]$$

Cette fréquence s'annule en bout de zone de Brillouin dans la direction [111] ($\gamma_k = -1$) pour une valeur du champ magnétique égale à :

$$H = 2H_E - H_A + H_{A1} + H_{A2}$$

c'est-à-dire pour $H = H_e$, champ de transition entre la phase floppée et la phase paramagnétique. La courbe de dispersion dans la direction [111] est représentée sur la figure 6 pour différentes valeurs du

FIGURE 4 Courbes de dispersion des ondes de spin dans la phase floppée pour différentes valeurs du champ magnétique, avec $\vec{k}$ parallèle à la direction [111] d'un réseau magnétique cubique. Trait plein : mode $\alpha(\omega_1)$. Trait interrompu : mode $\beta(\omega_2)$.



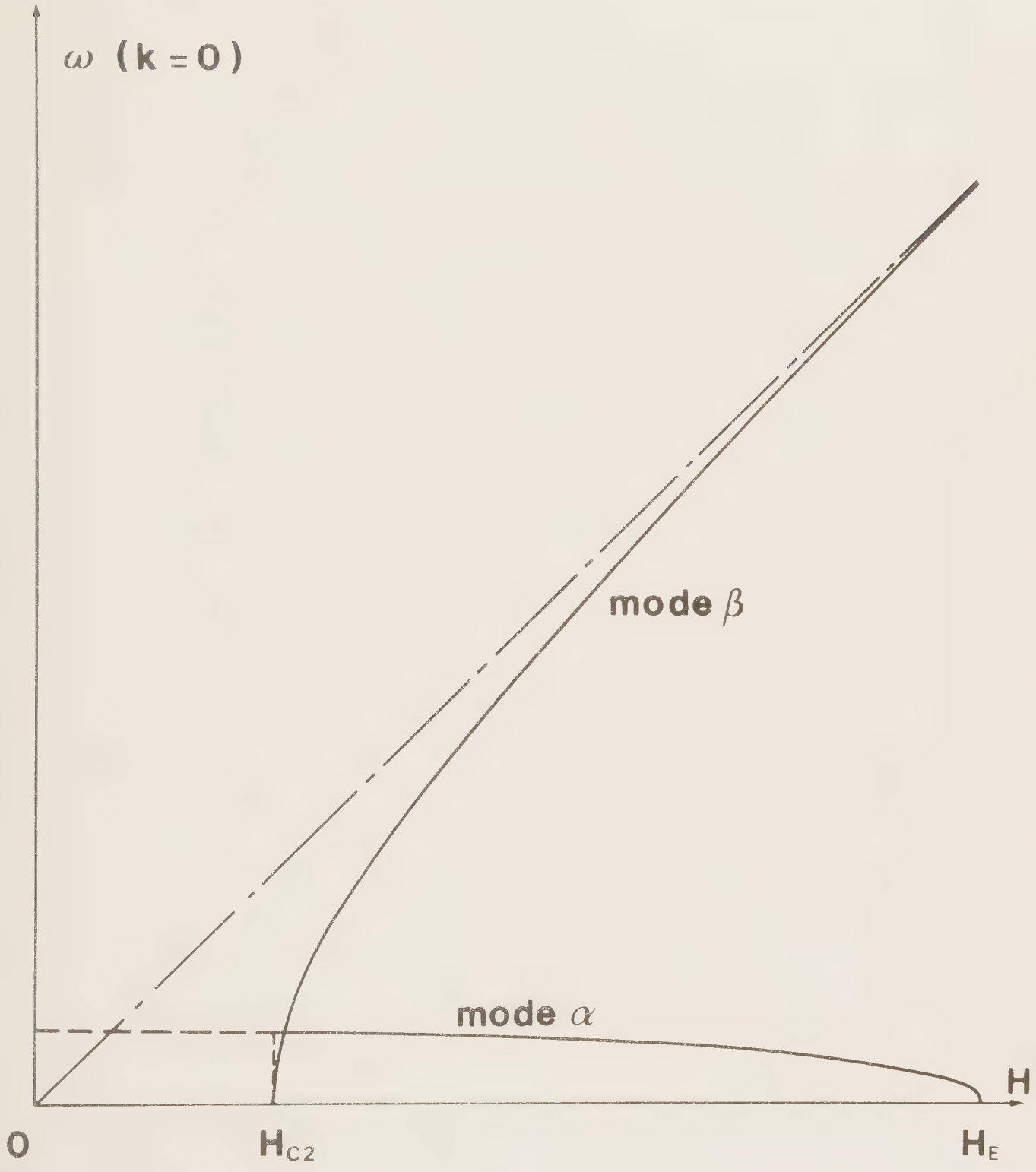


FIGURE 5 Variations des fréquences d'ondes de spin à k = 0 en fonction du champ magnétique dans la phase floppée, lorsque $H_{A1} \neq 0$. Le trait mixte représente la limite paramagnétique.

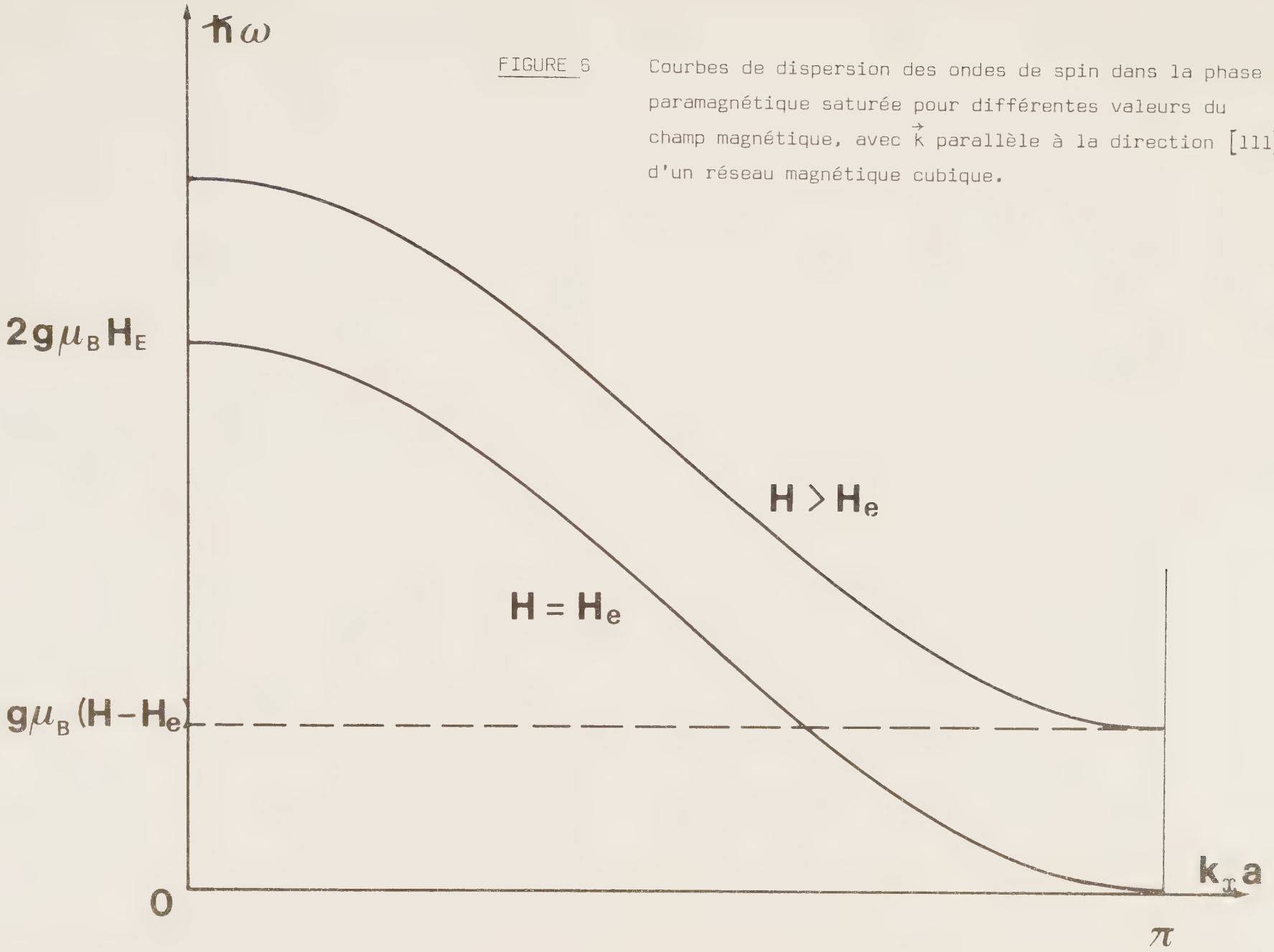


FIGURE 6 Courbes de dispersion des ondes de spin dans la phase paramagnétique saturée pour différentes valeurs du champ magnétique, avec $\vec{k}$ parallèle à la direction [111] d'un réseau magnétique cubique.

champ magnétique. Sa forme est la même que la courbe de dispersion des ondes de spin dans des composés ferromagnétiques mais sa position est inversée dans la zone de Brillouin. La fréquence à k = 0 est toujours grande puisqu'elle est de l'ordre de $2 \frac{g\mu_B}{\hbar} H_E$ à la transition d'échange, et qu'elle ne fait qu'augmenter lorsque le champ magnétique augmente. La transition d'échange est une transition du second ordre : elle ne s'accompagne d'aucune discontinuité dans les propriétés magnétiques du cristal, et le champ de transition déterminé à partir de la phase haut champ ou de la phase bas champ est le même. A la transition, seule la dimension de la zone de Brillouin magnétique change : elle est deux fois plus grande dans la phase paramagnétique, car sa dimension se trouve doublée dans la direction [111] . Ceci traduit simplement le fait que dans la phase paramagnétique les deux sous-réseaux sont identiques, donc la maille magnétique ne contient plus qu'un seul ion magnétique.

II-4 . *Problèmes liés à la transition spin-flop.*

Nous avons donné une description simple de la transition spin-flop, valable en toute rigueur à 0°K, et nous avons vu que la théorie du champ moléculaire, ou la théorie des ondes de spin, conduisait à la définition des trois champs critiques H_{C1}, H_{C2}, H_{C3}, c'est-à-dire prévoyait l'existence d'une hystérésis en champ magnétique caractéristique d'une transition du premier ordre. Nous donnons les valeurs de cette hystérésis $\Delta H = H_{C1} - H_{C2}$ dans le cas de quelques antiferromagnétiques usuels

MnF_2 :	$\Delta H \simeq 1,3$ kG	avec $H_{sf} \simeq 93$ kG
Cr_2O_3 :	$\Delta H \simeq 0,035$ kG	avec $H_{sf} \simeq 60$ kG
$GdAlO_3$:	$\Delta H \simeq$ [illegible] kG	avec $H_{sf} \simeq 11,5$ kG

si ΔH est particulièrement faible dans le cas de Cr_2O_3 ($\frac{\Delta H}{H_{sf}} \simeq 5.10^{-4}$), il n'en est pas de même par exemple dans MnF_2 ($\frac{\Delta H}{H_{sf}} \simeq 10^{-2}$), ni surtout dans $GdAlO_3$ ($\frac{\Delta H}{H_{sf}} \simeq 10^{-1}$) ; dans un bon nombre de composés antiferromagnétiques, l'hystérésis devrait donc aisément être mesurable. Or il se trouve qu'aucune expérience jusqu'à présent n'a pu mettre en évidence des champs de transition différents lors du passage à la transition dans un sens ou dans l'autre. Ceci ne veut pas dire que les conditions de stabilité ou les fréquences d'ondes de spin écrites plus haut soient fausses autour du spin-flop : par des expériences de résonance antiferromagnétique à assez basse fréquence (1 à 5 GHz) effectuées sur $GdAlO_3$, Blazey et al[ ] ont montré que les fréquences d'onde de spin à k = 0 dans la phase antiferromagnétique et dans la phase floppée correspondaient bien au modèle considéré, c'est-à-dire qu'elles s'annulaient pour des valeurs différentes du champ magnétique appliqué.

La conclusion que l'on peut tirer de ce désaccord est que la théorie simple que nous avons donnée ne suffit pas à décrire la transition spin-flop ; autrement dit, du point de vue des ondes de spin, la transition n'est pas provoquée par un mode d'onde de spin dont la fréquence s'annule (ou du moins par un mode d'onde de spin du type de ceux dont nous avons parlé), ou du point de vue de la stabilité des deux phases il faut sans doute tenir compte d'autres contributions à l'énergie magnétique du cristal, qui doivent avoir ici une influence déterminante. Il est de plus possible qu'une théorie complète de cette transition ne puisse être élaborée sans tenir compte de la dynamique des spins, c'est-à-dire, d'un point de vue microscopique, de la manière dont les spins passent d'une configuration à l'autre.

L'idée la plus couramment admise pour expliquer l'absence d'hystérésis est la suivante : on sait que lorsqu'un système est dans

l'état métastable, l'apparition de l'état stable en un point du système peut provoquer instantanément la transition en tous les autres points : il en est ainsi par exemple dans le cas d'un liquide en surfusion ou d'un gaz en état de sursaturation, et on peut établir de ce point de vue un certain parallèle entre la transition spin-flop et la transition liquide-gaz[7]. La transition spin-flop pourrait donc se faire en deux temps : pour $H < H_{C3}$ (champ thermodynamique), il existe des régions du cristal (au voisinage des défauts, impuretés, dislocations, ou des surfaces) où peuvent apparaître progressivement des domaines floppés ; lorsque le champ atteint la valeur H_{C3}, la présence de ces petits domaines entraîne la transition dans tout le cristal. La transition spin-flop → antiferromagnétique se produirait par le mécanisme inverse, donc pour la même valeur du champ magnétique $H = H_{C3}$. On peut montrer par exemple que, à la surface d'un cristal antiferromagnétique, il existe des magnons de surface[40,41] dont la fréquence tend vers zéro dans certaines conditions d'orientation du champ magnétique, pour $H \simeq \sqrt{H_E H_A + H_A^2}$; Keffer et al[42] ont montré par un calcul théorique que des domaines floppés se développaient progressivement au voisinage de la surface lorsque le champ magnétique devenait supérieur à $\sqrt{H_E H_A + H_A^2}$, entraînant la transition par le mécanisme évoqué ci-dessus. On peut en principe faire le même genre de calcul pour tous les types de défauts. Ce mécanisme de la transition spin-flop est tout à fait plausible ; il reste cependant jusqu'à présent essentiellement théorique ; personne à notre connaissance n'a par exemple mis en évidence des domaines floppés en surface, qui si la théorie est exacte, devraient exister sur une large gamme du champ magnétique (de $\frac{H_{sf}}{\sqrt{2}}$ à H_{sf}).

Une approche intéressante de la transition spin-flop a été formulée récemment en s'inspirant de la théorie des états intermédiaires dans les transitions du premier ordre, développée initialement par Landau dans le cas de la transition supraconducteur → état normal des supraconducteurs de première espèce en présence d'un champ magnétique. Il a été montré qu'il existe au voisinage du champ de spin-flop un intervalle de champ ΔH où les phases antiferromagnétique et floppée coexistent[43-46] : dans cette zone intermédiaire ; le cristal présente des domaines bien définis de chaque phase. L'existence de ces domaines provient de la présence du champ démagnétisant, et leur intervalle d'existence ΔH est fonction de la forme de l'échantillon. Le passage de la phase antiferromagnétique à la phase floppée se fait donc progressivement : dès que $H = H_{C2}$ (champ thermodynamique), des domaines floppés apparaissent, dont la taille augmente pour occuper finalement tout le volume du cristal lorsque $H = H_{C3}(1 + N_z \chi_m)$ où N_z représente le facteur de champ démagnétisant parallèlement au champ appliqué et χ_m la susceptibilité perpendiculaire. Ces domaines ont été mis en évidence dans MnF_2, par des mesures de susceptibilité[47] de résonance magnétique nucléaire[48] et d'absorption optique[48,49] et leur existence est maintenant clairement établie. De plus, il a été montré que l'existence de ces domaines ne changeait pas l'ordre de la transition[50].

Signalons enfin des calculs qui ont été effectués afin de déterminer les mouvements des spins des deux sous-réseaux pendant leur passage de la configuration antiferromagnétique à la configuration floppée[51]. Les résultats obtenus, relatifs aux propriétés dynamiques de la transition, n'ont jusqu'à présent pu donner lieu à aucune vérification expérimentale.

En résumé nous pouvons dire que, si la théorie classique élémentaire de la transition spin-flop ne peut rendre compte des résultats expérimentaux, la détermination à la fois théorique et

expérimentale des paramètres supplémentaires à prendre en compte pour modifier cette théorie est encore un sujet de controverses. La théorie et la mise en évidence dans MnF_2 de l'état intermédiaire ont fait sensiblement avancer la question, mais des mesures sur d'autres cristaux seraient sans doute instructives.

CHAPITRE III

COUPLAGE DES ULTRASONS AVEC LES ONDES DE SPIN DANS LES COMPOSES ANTIFERROMAGNETIQUES.

Le but de ce chapitre est de montrer de quelles manières on peut faire interagir une onde ultrasonore avec les ondes de spin d'un cristal antiférromagnétique, et quels renseignements on peut tirer de telles expériences. Nous nous intéresserons au cas où le champ magnétique est appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation, et examinerons de manière systématique tous les couplages possibles mettant en jeu deux ou trois ondes, en indiquant dans chaque cas le ou les mécanismes qui interviennent (modulation de l'intégrale d'échange, ou mécanisme de Van Vleck) ; ceci sera fait dans les trois phases : antiferromagnétique, floppée et paramagnétique saturée. Les raisonnements employés ici peuvent s'appliquer d'ailleurs à n'importe quelle configuration des spins, du moment que l'on sait déterminer le spectre et la symétrie des ondes de spin. Nous donnerons ensuite le principe du calcul de l'atténuation ultrasonore pour les différentes transitions considérées.

III-1 . *Différentes possibilités de couplage des ultrasons avec les ondes de spin.*

Dans les expériences que nous rapportons ici, nous avons mesuré les variations d'atténuation ultrasonore en fonction du champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation dans un cristal antiferromagnétique. Nous examinons ici les possibilités de couplage entre les ultrasons et les ondes de spin dans les différentes phases (antiferromagnétique, floppée et paramagnétique), et déterminons les mécanismes qui, dans chaque cas, peuvent conduire à ce couplage.

L'atténuation des ultrasons provient essentiellement des transition mettant en jeu deux ou trois ondes, et qui sont à priori :

1 phonon → 1 magnon

1 phonon → 2 magnons

1 phonon + 1 magnon → 1 magnon

Pour qu'une transition puisse exister, il faut que l'on trouve dans l'hamiltonien de couplage écrit en fonction des opérateurs de création et d'annihilation de phonons et de magnons, le terme qui lui correspond. Mais, pour que cette transition ait lieu effectivement, il faut de plus satisfaire aux conditions de conservation de l'énergie et du vecteur d'onde. C'est l'examen des courbes de dispersion des ondes de spin qui permet de résoudre ce dernier problème.

En ce qui concerne le couplage résonant direct (1 phonon → 1 magnon) les deux conditions suivantes doivent être simultanément remplies :

$$\omega_{us} = \omega_{spin} \quad \text{et} \quad \vec{k}_{us} = \vec{k}_{spin}$$

Le vecteur d'onde des ultrasons utilisés étant toujours petit ($ka \sim 10^{-5}$ à 10 GHz), et les courbes de dispersion des magnons étant toujours horizontales au voisinage de $k = 0$, les deux conditions écrites se résument en pratique à $\omega_{us} = \omega_{spin}$ $(k = 0)$.

La transition 1 phonon → 2 magnons ne peut se produire que si l'énergie des magnons créés est plus faible que l'énergie du phonon.

Un tel processus ne peut donc avoir lieu a priori qu'au voisinage des transitions de phase, les fréquences des ondes de spin étant en général beaucoup plus élevées que celles des ultrasons (10 GHz au maximum).

Les transitions 1 phonon + 1 magnon → 1 magnon peuvent conduire à une atténuation notable parce que lorsqu'on écrit les conditions de conservation de l'énergie et du vecteur d'onde, on s'aperçoit qu'en général c'est tout le spectre des ondes de spin qui peut intervenir et que l'efficacité du processus est surtout fonction du facteur de population du premier magnon, donc de la température.

Les hamiltoniens de couplage par modulation de l'intégrale d'échange et par le mécanisme de Van Vleck s'écrivent :

$$\mathcal{H}'_1 = \sum_{\ell m} \vec{F}(J_{\ell m}).\delta\vec{r}_{\ell m}(\vec{S}_\ell . \vec{S}_m) + \sum_{\ell m} \vec{f}(J_{\ell m}).\delta\vec{r}_{\ell m}\left[\frac{1}{2}(S^\ell_+ S^m_- + S^\ell_- S^m_+) + S^\ell_z S^m_z\right]$$

$$\mathcal{H}'_2 = \sum_\ell \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} v^\ell_{\alpha\beta\gamma\delta} S^\ell_\alpha S^\ell_\beta \varepsilon_{\gamma\delta} + \sum_m \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} v^m_{\alpha\beta\gamma\delta} S^m_\alpha S^m_\beta \varepsilon_{\gamma\delta}$$

$\delta\vec{r}$ et $\varepsilon_{\gamma\delta}$ peuvent être écrits en termes d'opérateurs de création et d'annihilation de phonons. Pour des ultrasons de fréquence ω_{us} et de vecteur d'onde q, on a :

$$\delta\vec{r} = \vec{e}_q \left(\frac{\hbar}{2NM\omega_{us}}\right)^{1/2} \left(a_q e^{i\vec{q}.\vec{R}_o} + a_q^+ e^{-i\vec{q}.\vec{R}_o}\right)$$

$$\varepsilon_{\gamma\delta} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \delta r_\gamma}{\partial x_\delta} + \frac{\partial \delta r_\delta}{\partial x_\gamma}\right) = \left(\frac{\hbar\omega}{2NMv^2_{us}}\right)^{1/2} \frac{1}{q}\frac{i}{2}(e_{q\gamma} q_\delta + e_{q\delta} q_\gamma)(a_q e^{i\vec{q}.\vec{R}_o} - a_q e^{-i\vec{q}.\vec{R}_o}$$

où $\vec{e}_q$ = vecteur unitaire dirigé dans le sens du déplacement associe au mode acoustique considéré.

$\vec{R}_o$ = position d'équilibre de l'atome.

M = masse de la maille cristallographique.

NM = masse du cristal.

v_{us} = vitesse de l'onde ultrasonore.

La méthode la plus simple consiste alors à écrire les opérateurs de spin qui interviennent dans $\mathcal{H}_1'$ et $\mathcal{H}_2'$ en fonction des opérateurs de création et d'annihilation de magnons. Les termes obtenus permettent de dire quelles transitions sont induites par chacun des mécanismes de couplage. Nous n'écrirons pas cela dans le cas général, parce que ce serait fastidieux en particulier pour $\mathcal{H}_2'$, mais nous allons donner une méthode qui permet de déterminer rapidement et systématiquement tous les termes a priori. L'examen des courbes de dispersion nous permettra ensuite de préciser les conditions d'observation des différentes transitions.

III-2 . *Phase antiferromagnétique.*

$\mathcal{H}_1'$ et $\mathcal{H}_2'$ ont des expressions qui sont quadratiques en opérateurs de spin S_+, S_- et S_Z. Les combinaisons qui interviennent sont :

pour $\mathcal{H}_1'$: $S_+^\ell S_-^m$, $S_-^\ell S_+^m$, $S_Z^\ell S_Z^m$

pour $\mathcal{H}_2'$: $S_+^{\ell 2}$, $S_-^{\ell 2}$, $\{S_+^\ell, S_-^\ell\}$, $\{S_+^\ell, S_Z^\ell\}$, $\{S_-^\ell, S_Z^\ell\}$, $S_Z^{\ell 2}$

$S_+^{m 2}$, $S_-^{m 2}$, $\{S_+^m, S_-^m\}$, $\{S_+^m, S_Z^m\}$, $\{S_-^m, S_Z^m\}$, $S_Z^{m 2}$

L'aimantation macroscopique suivant Z (axe de quantification) est donnée par :

$$M_Z = \sum_{\ell m} (S_Z^\ell + S_Z^m)$$

(au facteur $g\mu_B$ près que nous négligerons dans tout ce paragraphe).

Les opérateurs S_+^ℓ et S_+^m agissant sur l'état du système défini par exemple par le spin de chaque ion et l'aimantation macroscopique suivant l'axe Z augmentent M_Z d'une unité. De même, S_-^ℓ et S_-^m diminuent M_Z d'une unité, et S_Z^ℓ ou S_Z^m laissent M_Z inchangée. Pour les opérateurs qui interviennent dans $\mathcal{H}_1'$ et $\mathcal{H}_2'$, on a donc, quels que soient les indices ℓ et m :

opérateur	S_+^2	S_-^2	$S_+ S_-$ ou $S_- S_+$	$S_+ S_Z$ ou $S_Z S_+$	$S_- S_Z$ ou $S_Z S_-$	S_Z^2
ΔM_Z	+2	-2	0	+1	-1	0

Nous allons maintenant exprimer M_Z en fonction des opérateurs de création et d'annihilation de magnons (α et β définis plus haut) et chercher comment ces opérateurs, en agissant sur un état du système défini par les nombres d'occupation des ondes de spin α et β, modifient la valeur de M_Z.

On a :

$$M_Z = \sum_k (c_k^+ c_k - b_k^+ b_k)$$

ou, en passant aux opérateurs α et β, et en tenant compte de leurs relations de commutation :

$$M_Z = \sum_k (\beta_k^+ \beta_k - \alpha_k^+ \alpha_k) = \sum_k (n_{\beta k} - n_{\alpha k}) = N_\beta - N_\alpha$$

Considérons un état défini par les nombres d'occupation de chacun des modes. Nous le noterons $|\{n_\alpha\}, \{n_\beta\}>$. L'aimantation M_Z dans cet état est égale à $N_\beta - N_\alpha$. On peut écrire :

$$\alpha_k^+ \, |\{\ldots n_{\alpha k} \ldots\},\{\ldots n_{\beta k} \ldots\}> = \sqrt{n_{\alpha k}+1}\, |\{\ldots n_{\alpha k}+1 \ldots\},\{\ldots n_{\beta k} \ldots\}> \quad N_\beta-(N_\alpha+1) \quad \Delta M_Z = -1$$

$$\beta_k^+ \, |\{\ldots n_{\alpha k} \ldots\},\{\ldots n_{\beta k} \ldots\}> = \sqrt{n_{\beta k}+1}\, |\{\ldots n\alpha_k \ldots\},\{\ldots n_{\beta k}+1 \ldots\} > \quad (N_\beta+1)-N_\alpha \quad +1$$

$$\alpha_k \, |\{\ldots n_{\alpha k} \ldots\},\{\ldots n_{\beta k} \ldots\}> = \sqrt{n_{\alpha k}} \, |\{\ldots n\alpha_k - 1 \ldots\},\{\ldots n_{\beta k} \ldots\}> \quad N_\beta-(N_\alpha-1) \quad +1$$

$$\beta_k \, |\{\ldots n_{\alpha k} \ldots\},\{\ldots n_{\beta k} \ldots\}> = \sqrt{n_{\beta k}} \, |\{\ldots n_{\alpha k} \ldots\},\{\ldots n_{\beta k} - 1 \ldots\}> \quad (N_\beta - 1)-N_\alpha \quad -1$$

Si l'hamiltonien d'interaction contient par exemple un terme en S_+^2, cela veut dire qu'il induit des transitions $\Delta M_Z = +2$. Ces transitions correspondent du point de vue des opérateurs magnons à l'action de $\alpha\beta^+$, $\alpha\alpha$ ou $\beta^+\beta^+$. Il est facile de voir en faisant le calcul explicite, que lorsqu'on

effectue sur S_+^2 les transformations de Holstein Primakoff et de Bogoliubov, on obtient tous ces termes dans l'hamiltonien ; il en est de même pour tous les opérateurs de spin qui figurent dans l'hamiltonien d'interaction et cette propriété est indépendante du mécanisme de couplage puisqu'elle résulte uniquement des propriétés des opérateurs de spin.

Il est donc possible de dresser le tableau suivant qui donne tous les processus d'absorption d'un phonon à partir de l'opérateur de spin qui intervient dans $\mathcal{H}'$:

Opérateur	S_+^2	S_-^2	$S_+S_- \quad S_Z^2 \quad S_-S_+$	$S_+S_Z \quad S_ZS_+$	$S_-S_Z \quad S_ZS_-$
ΔM_Z	+2	-2	0	1	-1
Termes correspondants	$\alpha\beta^+ a$ $\beta^+\beta^+ a$ $\alpha\alpha\, a$	$\alpha^+\beta a$ $\alpha^+\alpha^+ a$ $\beta\beta a$	$\alpha\beta a$ $\alpha^+\beta^+ a$ $\alpha\alpha^+ a$ $\beta\beta^+ a$	$\beta^+ a$ αa	$\alpha^+ a$ βa

L'hamiltonien étant hermitique, il contient évidemment tous les termes complexes conjugués de ceux qui sont écrits ici, qui décrivent les transitions inverses.

Les termes qui ne contiennent que des opérateurs d'annihilation ne correspondent à aucun processus réel, car ils ne conservent pas l'énergie.

Sur la figure 7 sont représentées les diverses transitions qui peuve être induites par les ultrasons. D'après la forme des hamiltoniens de couplage $\mathcal{H}'_1$ et $\mathcal{H}'_2$, et le tableau ci-dessus, on voit que les transitio I et II ne peuvent avoir pour origine que le mécanisme de Van Vleck, tandis que les transitions III et IV trouvent leur origine à la fois dans la modulation de l'intégrale d'échange et dans le mécanisme de Van Vleck.

Il convient de faire les remarques suivantes :

- Les fréquences des ondes de spin étant en général grandes par rapport aux fréquences ultrasonores usuelles (10 GHz au maximum), le processus $\alpha^+ a$ (transition I, Fig.7) n'est pas observable dans la plupart

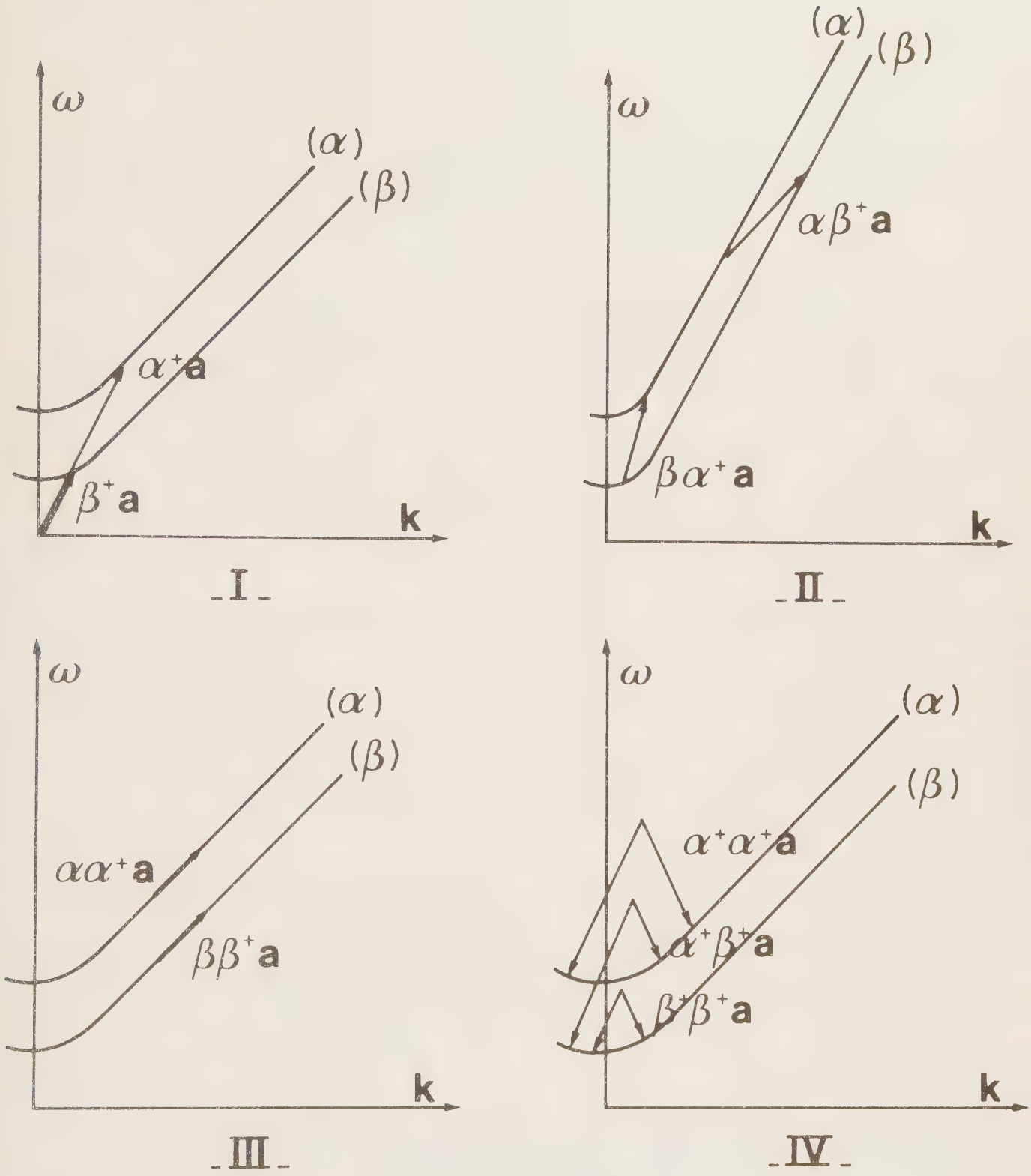


FIGURE 7 Schémas des différentes transitions pouvant être induites par des ultrasons dans le système des ondes de spin d'un antiferromagnétique (phase antiferromagnétique).

des antiferromagnétiques usuels à trois dimensions. On pourrait cependant tenter de l'observer à l'aide de la technique des impulsions de chaleur qui permet d'obtenir des phonons dont la fréquence est de l'ordre de 10^{11} à 10^{12} Hz.

- Le processus $\alpha\beta^+a$ (transition II) ne peut avoir lieu que si la vitesse de groupe des ondes de spin est plus grande que la vitesse ultrasonore, condition qui n'est que rarement réalisée en pratique : il faut que le champ d'échange soit très grand. L'oxyde de cuivre Cr_2O_3 [52] par exemple remplit cette condition , à basse température.

- Les transitions III ne peuvent se produire que si les vitesses des ondes de spin et des ultrasons sont égales, ce qui est assez exceptionnel. C'est le cas par exemple dans Cr_2O_3 vers 270°K [52].

- Les transitions IV ne sont généralement pas observables avec les fréquences ultrasonores usuelles, à l'exception de $\beta^+\beta^+a$ au voisinage de la transition spin-flop.

La méthode que nous avons indiquée pour trouver les transitions induites par $\mathcal{H}'_1$ et $\mathcal{H}'_2$ est valable pour les autres mécanismes d'interaction (modulation de l'interaction dipolaire, ou couplage par le champ des phonons), puisqu'il suffit de connaître les opérateurs de spin correspondants.

La condition de conservation de l'énergie dans une transition n'est pas aussi restrictive qu'on pourrait le penser en regardant par exemple la figure 7 : en réalité, les ultrasons et les magnons ont toujours un temps de vie fini, que l'on peut traduire sur le diagramme (ω,k) par une certaine largeur en fréquence des courbes de dispersion.

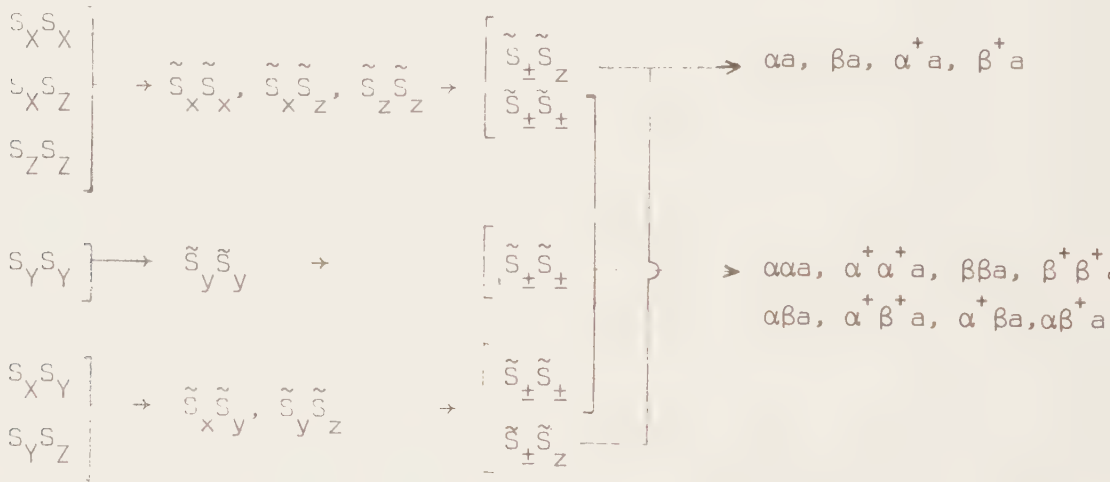
III-3 . *Phase floppée*.

Dans la phase floppée, nous allons voir que les deux mécanismes de couplage que nous considérons peuvent a priori induire toutes les transitions résonnantes et non résonnantes possibles avec les modes α et β .

On peut comparer du point de vue de la symétrie des ondes de spin et des hamiltoniens de couplage ce qui différencie la phase floppée de la phase antiferromagnétique. Dans la phase antiferromagnétique, on peut dire que les ondes de spin ont la symétrie de S_+ et S_-, c'est-à-dire que les

mouvements propres de l'aimantation sont des combinaisons linéaires de S_+^ℓ, S_+^m, S_-^ℓ et S_-^m . Le couplage magnétoélastique s'exprime dans $\mathcal{H}_1'$ ou $\mathcal{H}_2'$ directement en fonction des mêmes variables S_+^ℓ, S_+^m, S_-^ℓ et S_-^m ; on comprend bien alors que si $\mathcal{H}_1'$ et $\mathcal{H}_2'$ ne contiennent pas les mêmes termes (ce qui est bien le cas), les transitions qu'ils induisent ne sont pas les mêmes. Dans la phase floppée, la symétrie des ondes de spin est tout à fait différente, et on peut montrer que les mouvements propres de l'aimantation sont des combinaisons linéaires de $\tilde{S}_x^\ell + \tilde{S}_x^m$, $\tilde{S}_x^\ell - \tilde{S}_x^m$, $\tilde{S}_y^\ell + \tilde{S}_y^m$, $\tilde{S}_y^\ell - \tilde{S}_y^m$ (voir Appendice 1) ; l'hamiltonien d'interaction $\mathcal{H}_1'$ ou $\mathcal{H}_2'$ est toujours le même, mais toute fonction de $S_+^{\ell,m}$ ou $S_-^{\ell,m}$ exprimée en fonction de $\tilde{S}_x^\ell \pm \tilde{S}_x^m$ et $\tilde{S}_y^\ell \pm \tilde{S}_y^m$ contient ces quatre variables à la fois (sauf peut-être dans des cas pathologiques). Toutes les transitions sont donc a priori possibles.

On peut le vérifier facilement en écrivant les termes obtenus à partir de $\mathcal{H}_1'$ et $\mathcal{H}_2'$ et en les transformant en opérateurs de création et annihilation de magnons α et β .



Nous n'avons pas précisé les indices ℓ et m pour les opérateurs de spin $\tilde{S}_\alpha$ parce que le schéma est le même pour les couples (ℓ,ℓ), (m,m) et (ℓ,m). La notation $\tilde{S}_\pm\tilde{S}_\pm$ veut dire que l'on a des termes à la fois en $\tilde{S}_+\tilde{S}_+$, $\tilde{S}_-\tilde{S}_-$, $\tilde{S}_+\tilde{S}_-$ et $\tilde{S}_-\tilde{S}_+$ (même chose pour $\tilde{S}_\pm\tilde{S}_z$).

Nous allons nous intéresser par la suite essentiellement au couplage résonnant entre les ultrasons et les ondes de spin. Il peut avoir lieu comme nous l'avons vu :

- près de la transition spin-flop si c'est le mode β qui est mis en jeu, parce que sa fréquence est faible seulement pour $H \gtrsim H_{sf}$.

- dans toute la phase floppée si le couplage se fait avec le mode α parce que sa fréquence est relativement faible et varie lentement en fonction du champ magnétique.

Les termes qui traduisent le couplage résonnant sont ceux qui contiennent un opérateur phonon (a) et un opérateur magnon (α^+ ou β^+). Ils proviennent de tous les termes qui interviennent dans $\mathcal{H}'_1$ et $\mathcal{H}'_2$ à l'exception de $S_Y S_Y$. A ce stade, on peut aller un peu plus loin en remarquant que, compte tenu de la forme de la transformation de Bogoliubov employée dans la phase floppée, les termes en $\tilde{S}^{\ell}_x - \tilde{S}^{m}_x$ et $\tilde{S}^{\ell}_y - \tilde{S}^{m}_y$ conduisent à un couplage résonnant seulement avec le mode α, ceux en $\tilde{S}^{\ell}_x + \tilde{S}^{m}_x$ et $\tilde{S}^{\ell}_y + \tilde{S}^{m}_y$ seulement avec β. On peut donc écrire :

$S_X S_X$, $S_Z S_Z$, $S_X S_Y$, $S_Y S_X$ → couplage résonnant avec le mode α.

$S_Y S_Z$, $S_X S_Z$, $S_Z S_Y$, $S_Z S_X$ → couplage résonnant avec le mode β.

Le couplage résonnant dans la phase floppée ne pourra être attribué à un mécanisme plutôt qu'à l'autre que si on sait trouver et vérifier les règles de sélection relatives à chaque mécanisme, ou si on connait a priori l'ordre de grandeur de l'atténuation que l'on doit observer (c'est-à-dire si on connait les constantes G ou $\frac{\partial J}{\partial \vec{r}}$.

III-4 . *Phase paramagnétique*.

Dans la phase paramagnétique, le couplage résonnant des ultrasons avec les ondes de spin est en principe possible et on montre facilement qu'il résulte du mécanisme de Van Vleck. Cependant, près de k = 0, les ondes de spin ont une fréquence qui est en général élevée (supérieure à 60 GHz dans $GaAlO_3$, supérieure à 500 GHz dans MnF_2 par exemple) ce qui exclut la possibilité d'observer ce couplage résonnant avec les ultrasons de fréquences usuelles (< 10 GHz).

Au voisinage de la transition de la phase paramagnétique vers la phase floppée, les ondes de spin en bout de zone (dans la direction [111] pour un réseau magnétique cubique) ont leur fréquence qui tend vers zéro. On peut donc s'attendre a priori à avoir les transitions suivantes :

1 phonon + 1 magnon → 1 magnon

1 phonon → 2 magnons

L'origine de ces transitions peut se trouver à la fois dans la modulation de l'intégrale d'échange et dans la mécanisme de Van Vleck, qui donnent tous les deux des termes en $\alpha^{+}\alpha a$ et $\alpha^{+}\alpha^{+}a$

III 4. . *Ondes magnétoélastiques. Influence sur les champs de transition.*

Le calcul des lois de dispersion des ondes de spin tel que nous l'avons présenté au chapitre précédent repose sur une approximation qui est la même que l'approximation adiabatique de Born-Oppenheimer utilisée pour calculer les propriétés électroniques d'un cristal, à savoir : on calcule les fréquences propres de l'aimantation en supposant que les ions sont immobiles, figés dans leur position d'équilibre. De même, le calcul des lois de dispersion des phonons se fait en supposant que les mouvements des atomes ne sont pas affectés par les mouvements de l'aimantation. Cette approximation cesse en général d'être valable lorque les fréquences et vecteurs d'onde des phonons et des magnons deviennent égaux ou voisins. Pour déterminer les vibrations propres du système il faut alors dans l'hamiltonien tenir compte à la fois d'un terme d'énergie élastique, d'un terme d'énergie magnétique et d'un terme de couplage ; ce dernier représente le couplage résonnant entre phonons et magnons. Les excitations collectives du système ne sont alors plus des vibrations pures du réseau ni des ondes de spin pures, mais des ondes magnétoélastiques. Les courbes de dispersion des ondes magnétoélastiques sont représentées schématiquement sur la figure 8 dans le cas simple où les ondes de spin et les phonons ne sont pas dégénérés.

Les lois de dispersion des ondes magnétoélastiques se calculent aisément (Appendice 2) :

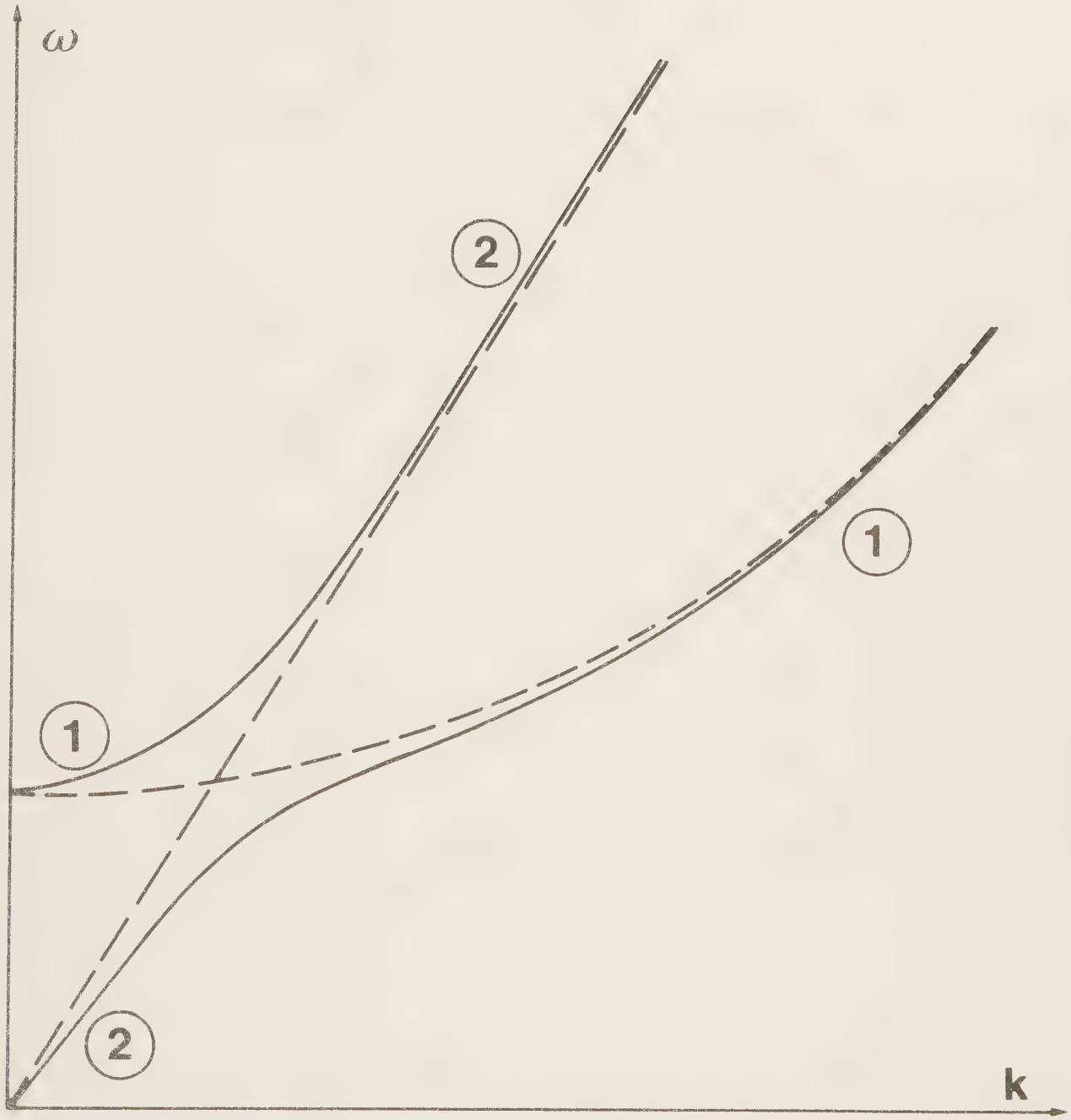


FIGURE 8 Exemple de courbes de dispersion d'ondes magnéto-élastiques. En traits interrompus sont représentées les lois de dispersion des phonons et des magnons en l'absence de couplage.

$$\hbar\omega_{me}^{(1)}(k) = \hbar\omega_{spin}(k)\cos^2\xi_k + \hbar\omega_{us}(k)\sin^2\xi_k - 2g_k\sin\xi_k\cos\xi_k$$

$$\hbar\omega_{me}^{(2)}(k) = \hbar\omega_{us}(k)\cos^2\xi_k + \hbar\omega_{spin}(k)\sin^2\xi_k + 2g_k\sin\xi_k\cos\xi_k$$

où g_k est un facteur de couplage et ξ_k est défini par $tg2\xi_k = \dfrac{2g_k}{\hbar[\omega_{us}(k)-\omega_{spin}(k)]}$

Les indices (1) et (2) correspondent aux notations (1) et (2) de la figure 8. Le calcul fait est valable à T = 0, c'est-à-dire dans l'approximation des ondes de spin et des phonons non renormalisés (temps de vie infini).

Supposons que la fréquence du mode d'onde de spin diminue lorsqu'on augmente le champ magnétique, comme cela se passe dans la phase antiferromagnétique, ou dans la phase floppée. Nous avons défini précédemment le champ de transition H_c (transition antiferro → flop ou flop → para) par la condition $\omega_{spin}(k = 0, H = H_c) = 0$. Montrons maintenant que le couplage magnétoélastique , parce qu'il modifie les lois de dispersion, a pour effet de modifier la valeur du champ de transition qui devient $H_c^* \neq H_c$. Nous nous plaçons pour plus de simplicité dans le cas de la phase antiferromagnétique, c'est-à-dire que $\hbar\omega_1(k=0) = g\mu_B(H_c - H)$.

La transition vers la phase floppée a lieu dès qu'un mode de vibration du cristal voit sa fréquence devenir négative. Cela se produit en premier pour la branche (2) de la figure 8, à k = 0 et la condition qui détermine le champ de transition est :

$$\left(\frac{d\omega_{me}^{(2)}}{dk}\right)_{k=0} = 0$$

Cette condition s'écrit, compte tenu de la définition de ξ_k :

$$\left[v_{us}(k)\cos^2\xi_k + v_{spin}(k)\sin^2\xi_k + \frac{2}{\hbar}\frac{dg_k}{dk}\sin\xi_k\cos\xi_k\right]_{k\to 0} = 0$$

Nous avons écrit dans l'appendice 2 cette équation, dans le cas du couplage entre les phonons de polarisation longitudinale et le mode d'onde de spin β de la phase antiferromagnétique. Si on appelle H_c le champ magnétique pour lequel la fréquence de ce mode devient nulle à k = 0,

on trouve que la condition écrite ci-dessus pour l'onde magnétoélastique est remplie lorsque le champ atteint la valeur H_c^* donnée par :

$$H_c^* = H_c \left[1 - \frac{B^2}{H_A} \right]$$

où B représente une constante de couplage proportionnelle à la constante de couplage magnétoélastique qui intervient dans le cas considéré.

On peut écrire une équation de ce type donc définir un champ H_c^* pour tous les modes de phonons acoustiques du cristal. Le champ de transition sera donc égal au plus faible des champs critiques H_c^* ainsi définis.

Ce déplacement de la transition est en fait un phénomène tout à fait général. Considérons un système dans lequel on peut associer à la transition un mode de vibration dont la fréquence s'annule (mode mou : ondes de spin dans un antiferromagnétique, phonons dans les transitions de structure des ferroélectriques...). Si les déformations élastiques sont couplées linéairement avec la grandeur vibrante caractéristique de ce mode mou, on peut montrer qu'il en résulte une modification profonde des lois de dispersio des phonons acoustiques et que la transition se trouve déplacée (en température ou champ magnétique) par rapport à ce qu'elle serait en l'absenc de couplage ; dans une certaine mesure, on peut dire que le changement de phase résulte plus d'une instabilité élastique du cristal que de l'instabili du mode mou. Cette idée peut être illustrée sur de nombreux exemples (voir références citées dans (15)). Cette situation existe , par exemple, dans les composés antiferromagnétiques au voisinage de la transition de spin-flop ou de la transition flop-para, où la fréquence d'un mode d'onde de spin à k = 0 tend à s'annuler ; des expériences à basse fréquence[53] ont pu montrer que la vitesse ultrasonore tendait vers zéro lorsqu'on s'approche de la transition spin-flop, mais le couplage est en général trop faible pour que l'on puisse distinguer H_c et H_c^*.

III-6 . *Calcul de l'atténuation ultrasonore.*

Si $\mathcal{H}'$ représente l'hamiltonien d'interaction entre les ultrasons et les magnons, la probabilité de transition entre deux états $|i\rangle$ et $|f\rangle$ du système est donnée par :

$$P = \frac{2\pi}{4\hbar^2} \left| \langle i | \mathcal{H}' | f \rangle \right|^2 \quad f(\omega_{us} - \omega_{spin})$$

où $f(\omega_{us} - \omega_{spin})$ est une fonction de forme qui dépend de la largeur en fréquence des ultrasons et des ondes de spin. En pratique, la fréquence ultrasonore est beaucoup mieux définie que celle des ondes de spin, et $f(\omega_{us} - \omega_{spin})$ rend compte simplement du temps de vie fini des ondes de spin. Nous supposerons par la suite que cette fonction est une lorentzienne :

$$f(\omega_{us} - \omega_{spin}) = \frac{\tau/\pi}{1 + \tau^2(\omega_{us} - \omega_{spin})^2}$$

τ = temps de relaxation des ondes de spin.

L'atténuation en décibels par unité de longueur s'écrit alors :

$$\alpha_{dB/cm} = 4{,}35 \frac{P}{N_{us} v_{us}}$$

où N_{us} représente la population des phonons ultrasonores de pulsation ω_{us} présents dans le cristal et v_{us} leur vitesse exprimée en cm/s.

$$\alpha_{dB/cm} = 4{,}35 \frac{\left|\langle i | \mathcal{H}' | f \rangle\right|^2}{2\hbar^2 N_{us} v_{us}} \quad \frac{\tau}{1 + \tau^2(\omega_{us} - \omega_{spin})^2}$$

- Dans le cas d'un couplage résonnant à deux ondes, l'hamiltonien s'écrit :

$$\mathcal{H}' = g(\alpha_q^+ a_q - \alpha_q a_q^+)$$

Les états $|i\rangle$ et $|f\rangle$ sont définis par les nombres d'occupation des modes de phonons et de magnons.

$$\left|\langle i | \mathcal{H}' | f \rangle\right|^2 = (N_{us} - N_{\alpha q}) |g|^2 \simeq N_{us} |g|^2$$

$$\text{d'où} \quad \alpha_{dB/cm} = 4{,}35 \; \frac{|g|^2}{2\hbar^2 v_{us}} \; \frac{\tau}{1 + \tau^2(\omega_{us} - \omega_{spin})^2}$$

L'atténuation maximum se produit toujours au voisinage de $\omega_{us} = \omega_{spin}$, donc :

$$\alpha_{max}(dB/cm) \simeq 4{,}35 \; \frac{|g|^2}{2\hbar^2 v_{us}} \; \tau$$

- Dans le cas d'un couplage à trois ondes, l'hamiltonien s'écrit :

1) $\mathcal{H}'_{(1)} = \sum_k g(k,k') \; (\alpha_k^+ \beta_{k'} a_q - \alpha_k \beta_{k'}^+ a_q^+)$ si 1 phonon + 1 magnon → 1 magn

2) $\mathcal{H}'_{(2)} = \sum_k g(k,k') \; (\alpha_k^+ \alpha_{k'}^+ a_q - \alpha_k \alpha_{k'} a_q^+)$ si 1 phonon → 2 magnons.

$$|\langle i|\mathcal{H}'_{(1)}|f\rangle|^2 = N_{us}(N_{\alpha k} - N_{\beta k'}) \, |g(k,k')|^2$$

$$|\langle i|\mathcal{H}'_{(2)}|f\rangle|^2 = N_{us}(1 + N_{\alpha k} + N_{\alpha k'}) \, |g(k,k')|^2$$

d'où

1) $$\alpha_{dB/cm} = 4{,}35 \; \frac{|g(k,k')|^2}{2\hbar^2 v_{us}} \; \frac{\tau}{1+\tau^2(\omega_{us} + \omega_\beta - \omega_\alpha)^2} \; (N_{\alpha k} - N_{\beta k'})$$

2) $$\alpha_{dB/cm} = 4{,}35 \; \frac{|g(k,k')|^2}{2\hbar^2 v_{us}} \; \frac{\tau}{1+\tau^2(\omega_{us} - \omega_{\alpha k} - \omega_{\alpha k'})} \; (1+N_{\alpha k} + N_{\alpha k'})$$

On voit dans tous les cas que le nombre d'ultrasons N_{us} s'élimine, ce qui signifie que l'atténuation est indépendante de la puissance ultrasonore dans le cristal. Les résultats trouvés supposent l'absence de de toute saturation, c'est-à-dire que les populations des niveaux de spin ne sont pratiquement pas affectées par les ultrasons, et représentent donc les populations thermiques.

CHAPITRE IV

COUPLAGE MAGNONS-PHONONS DANS $GdAlO_3$.

Après avoir rappelé les principales propriétés cristallographiques et magnétiques de l'aluminate de gadolinium, nous écrirons sous sa forme générale l'hamiltonien de couplage phonons-magnons par le mécanisme de Van Vleck, en tenant compte des propriétés de symétrie du cristal. Nous déterminerons ensuite les règles de sélection pour différentes transitions dans les phases antiferromagnétique et floppée, en considérant des ondes ultrasonores dont les directions de propagation et de polarisation sont des axes cristallographiques simples. L'atténuation ultrasonore sera calculée dans quelques cas qui correspondent aux expériences rapportées par la suite.

IV-1 . *Propriétés cristallographiques et magnétiques de $GdAlO_3$.*

La structure cristalline de l'aluminate de gadolinium est celle d'une pérovskite à légère déformation orthorhombique ; le groupe d'espace est D_{2h}^{16} ou Pbnm[54]. La maille élémentaire est formée de quatre groupements pérovskite (Fig.9).

Les études faites sur ce cristal ont porté essentiellement sur la détermination de ses propriétés magnétiques statiques, par mesures d'aimantation ou de susceptibilité[55-58], et de ses propriétés élastiques (mesure des constantes élastiques)[2], ainsi que sur le couplage magnétoélastique dans différentes conditions de température et de champ magnétique (2-5) . Un intérêt particulier de ce composé vient du

fait que toutes ses phases magnétiques sont aisément accessibles, puisque sa température de Néel est de 3,9°K, son champ d'échange $H_E \simeq 19kG$ et son champ d'anisotropie $H_A \simeq 3,5$ kG. Le diagramme de phase déterminé par Blazey et al.[58] est reproduit sur la figure 10. Ce cristal peut être décrit par un modèle simple à deux sous-réseaux magnétiques antiparallèles, chaque ion Gd^{3+} étant entouré de 6 premiers voisins équivalents appartenant au second sous-réseau (le réseau magnétique a, en première approximation, une structure cubique simple). Dans la phase antiferromagnétique, les spins sont orientés suivant l'axe orthorhombique [010]. Cashion et al.[57] ont montré que la structure magnétique de $GdAlO_3$ correspondait à un champ dipolaire faible ($\sim$ 0,3 kG), dont les effets s'opposaient à ceux de l'interaction d'échange, ce qui implique que l'ordre magnétique résulte des forces d'échange et que l'anisotropie soit un effet du champ cristallin. D'après les mesures de susceptibilité [57,58], on sait que dans la phase floppée, les spins se trouvent dans le plan (100) (plan b c), ce qui montre qu'il existe une anisotropie dans le plan (010) (plan perpendiculaire à l'axe de facile aimantation). La manière d'interpréter les courbes de susceptibilité ne permet cependant pas de savoir exactement quelle valeur attribuer au champ d'anisotropie H_{A1} correspondant.

L'intérêt de l'étude de ce cristal par des méthodes ultrasonores se trouve renforcé du fait que l'ion Gd^{3+} a une très grande section efficace d'absorption pour les neutrons, ce qui interdit les mesures par cette dernière méthode[59].

IV-2 . *Hamiltonien de couplage phonons-magnons dans $GdAlO_3$.*

Comme nous le verrons par la suite, tous les phénomènes que nous avons observés sont dûs au couplage par le mécanisme de Van Vleck. Aussi n'écrirons nous en détail que l'hamiltonien relatif à ce mécanisme, c'est-à-dire :

$$\mathcal{H} = \sum_{i} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} b^{\lambda}_{\alpha\beta\gamma\delta} S^{i}_{\alpha} S^{i}_{\beta} \varepsilon_{\gamma\delta}$$

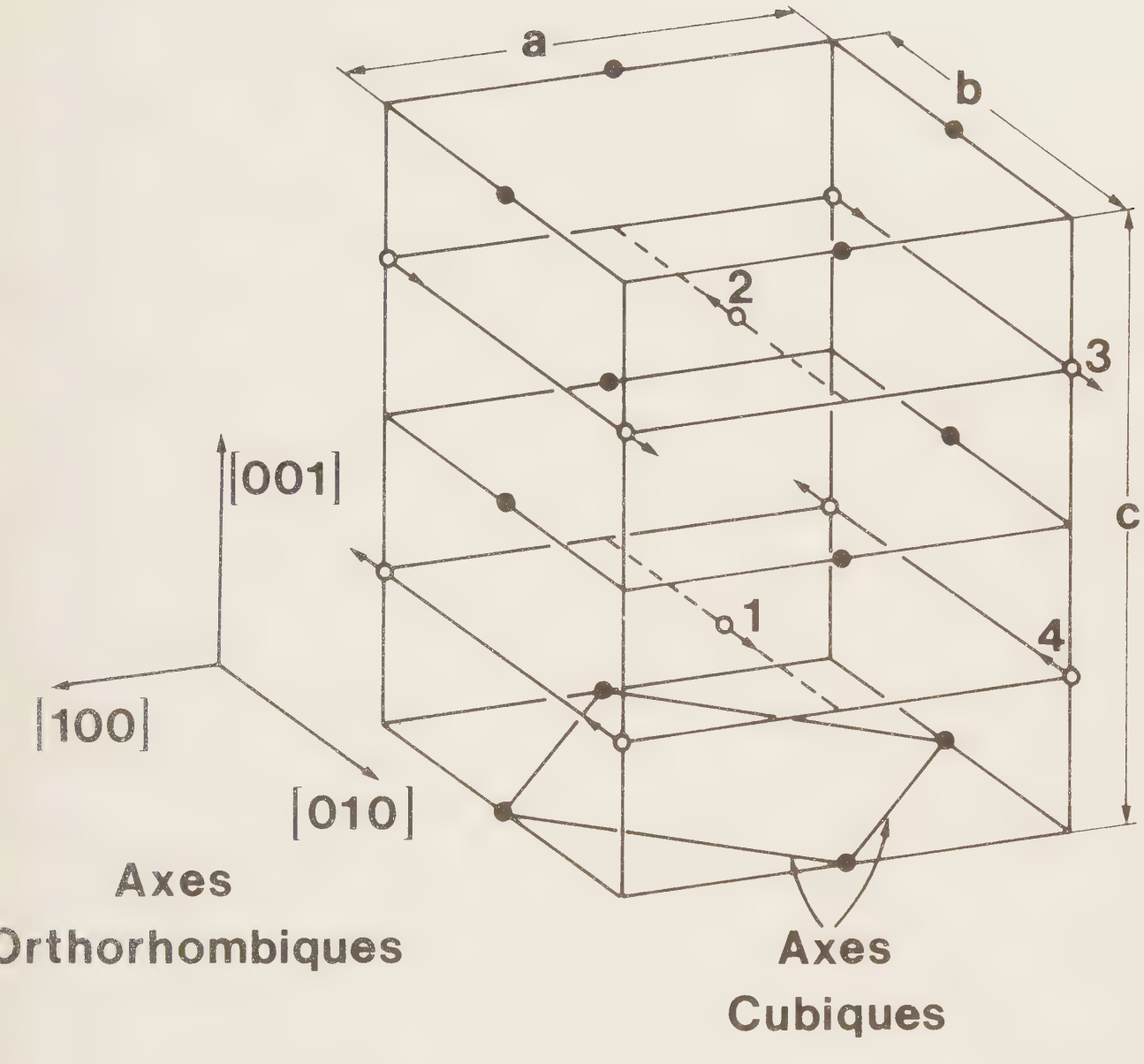


FIGURE 9 Structure cristallographique et magnétique de $GdAlO_3$. Les flèches indiquent les directions d'orientation des spins de chaque sous-réseau.

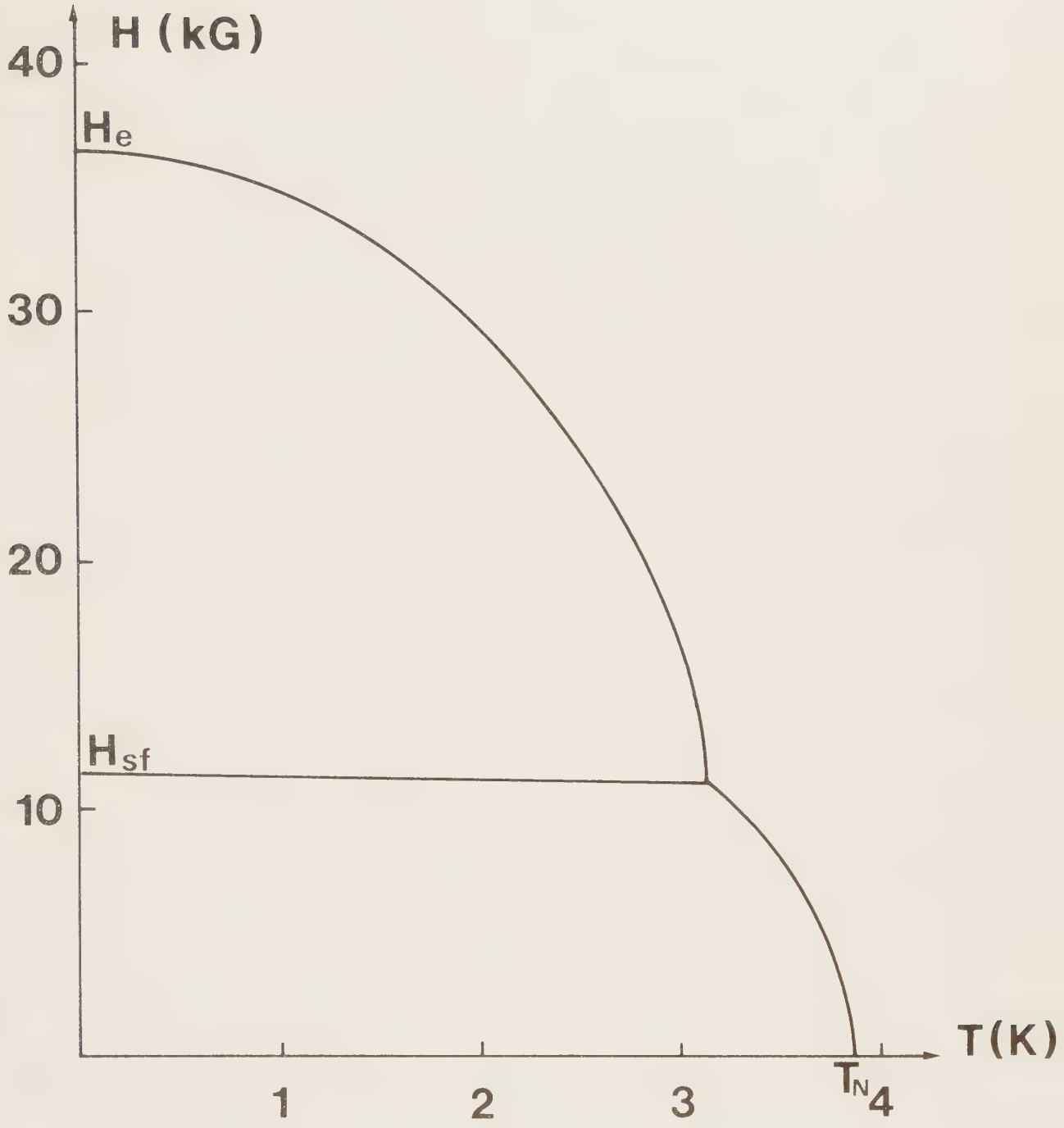


FIGURE 10 Diagramme de phase de $GdAlO_3$ avec H parallèle à l'axe de facile aimantation, d'après Blazey et al.[68].

où l'indice i est relatif à chaque ion magnétique du cristal. La forme du tenseur (G^i) est déterminé par la symétrie du site cristallin dans lequel l'ion i se trouve placé. Dans la maille orthorhombique, les ions Gd^{3+} occupent quatre sites différents notés 1,2,3,4 sur la figure 9, les sites 1 et 3 appartenant à l'un des sous-réseaux magnétiques, 2 et 4 à l'autre. La déformation orthorhombique étant très faible, on peut considérer en première approximation que la structure est celle d'une perovskite idéale dont les ions Gd^{3+} occupent les sites A. Ces sites sont tous équivalents, et chaque ion Gd^{3+} est entouré de douze ions oxygène qui donnent au site magnétique la symétrie cubique O_h. Les axes cubiques se trouvent à 45° des axes orthorhombiques a et b du cristal (Fig.9). Le tenseur des constantes de couplage magnétoélastique s'écrit alors [60], pour chaque ion Gd^{3+} :

$$G = \begin{bmatrix} G_{11} & -G_{11/2} & -G_{11/2} & 0 & 0 & 0 \\ -G_{11/2} & G_{11} & -G_{11/2} & 0 & 0 & 0 \\ -G_{11/2} & -G_{11/2} & G_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & G_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & G_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & G_{44} \end{bmatrix}$$

d'où

$$\mathcal{H}' = \sum_{\ell=1}^{N} \left\{ \frac{1}{2} G_{11} \left[(3S_x^{\ell 2} - S^2)\varepsilon_{xx} + (3S_y^{\ell 2} - S^2)\varepsilon_{yy} + (3S_z^{\ell 2} - S^2)\varepsilon_{zz} \right] \right.$$

$$\left. + 2G_{44} \left[\{ S_x^{\ell}, S_y^{\ell} \} \varepsilon_{xy} + \{ S_y^{\ell}, S_z^{\ell} \} \varepsilon_{yz} + \{ S_z^{\ell}, S_x^{\ell} \} \varepsilon_{zx} \right] \right\} + \sum_{m=1}^{N} \left\{ \begin{array}{c} \text{même terme} \\ \text{en m} \end{array} \right\}$$

où les indices ℓ et m sont relatifs à chacun des deux sous-réseaux, et 2N représente le nombre total d'ions Gd^{3+} dans le cristal. On a utilisé la notation $\{ S_\alpha, S_\beta \} = S_\alpha S_\beta + S_\beta S_\alpha$.

Les axes x y z sont les axes cubiques (axes du site). Nous prendrons comme direction de quantification la direction du champ magnétique, c'est-à-dire l'axe orthorhombique [010] du cristal. Les composantes des spins dans les axes orthorhombiques et cubiques sont reliées par (voir figure 11) :

$$\begin{bmatrix} S_x \\ S_y \\ S_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 0 & -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_X \\ S_Y \\ S_Z \end{bmatrix}$$

L'hamiltonien d'interaction s'écrit alors :

$$\mathcal{H}' = \sum_{\ell} \Big\{ \frac{G_{11}}{2} (3S_x^{\ell 2} - S^2)\varepsilon_{xx} + \frac{G_{11}}{2} \Big[\frac{3}{2} (S_Z^{\ell 2} + S_Y^{\ell 2} + \{S_Z^{\ell}, S_Y^{\ell}\}) - S^2 \Big] \varepsilon_{yy}$$

$$+ \frac{G_{11}}{2} \Big[\frac{3}{2} (S_Z^{\ell 2} + S_Y^{\ell 2} - \{S_Z^{\ell}, S_Y^{\ell}\}) - S^2 \Big] \varepsilon_{zz} + G_{44}\sqrt{2} \left(\{S_X^{\ell}, S_Z^{\ell}\} + \{S_X^{\ell}, S_Y^{\ell}\} \right) \varepsilon_{xy}$$

$$+ G_{44}\sqrt{2} \left(\{S_X^{\ell}, S_Z^{\ell}\} - \{S_X^{\ell}, S_Y^{\ell}\} \right) \varepsilon_{xz} + 2G_{44} (S_Z^{\ell 2} - S_Y^{\ell 2}) \varepsilon_{yz} \Big\} + \sum_{m} \{ m \}$$

C'est sous cette forme que nous l'utiliserons par la suite dans chaque cas particulier de déformation ultrasonore et d'orientation des spins par rapport au champ magnétique.

IV-3 . *Couplage dans la phase antiferromagnétique*

Les courbes de dispersion des ondes de spin à T = 0 dans la phase antiferromagnétique de $GdAlO_3$ sont représentées sur la figure 12, pour la direction $\vec{k}$ // [111] , en présence d'un champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation. Les courbes de dispersion des phonons acoustiques sont pratiquement verticales sur ce

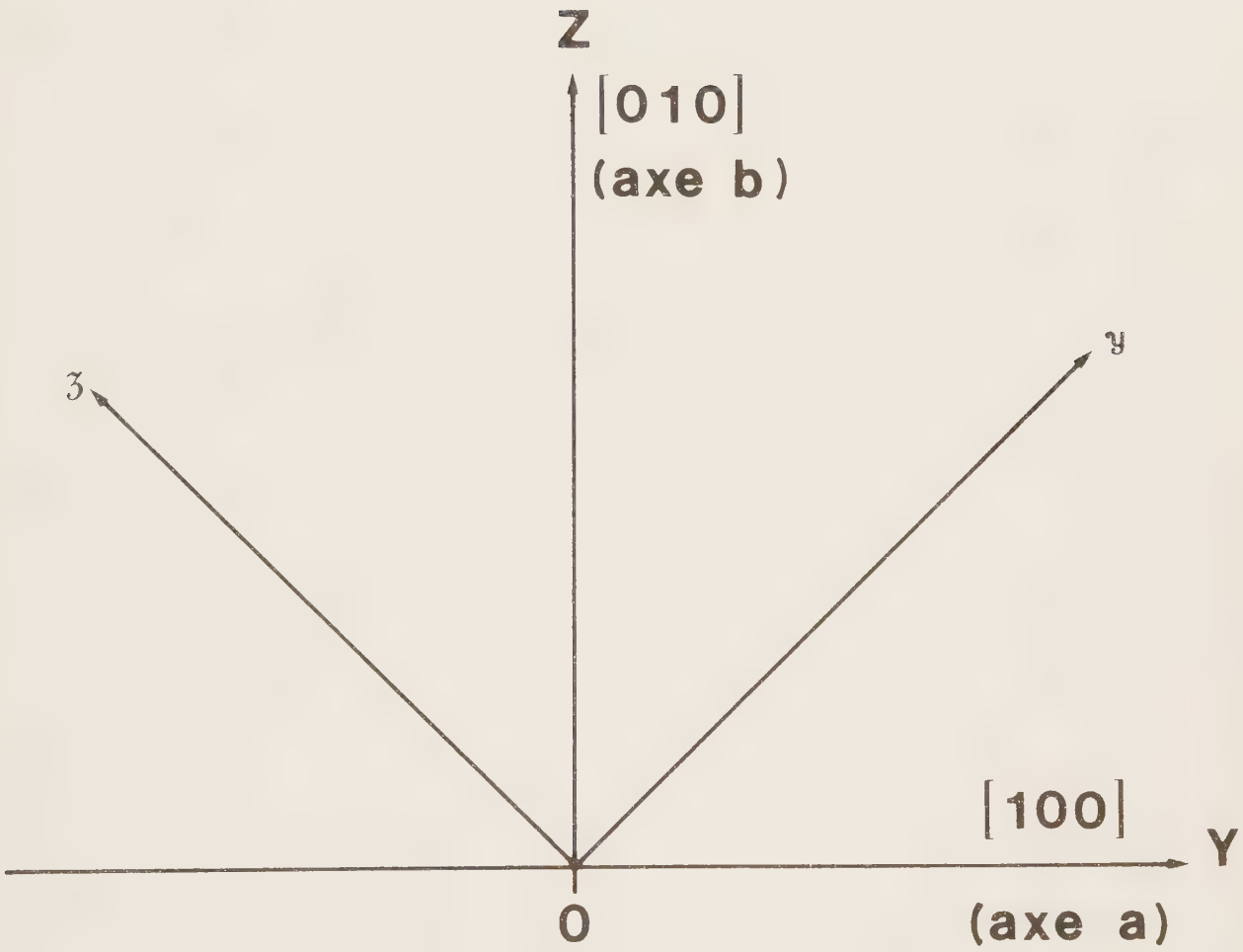


FIGURE 11 Correspondance entre les axes cubiques et orthorhombiques de $GdAlO_3$.

OY, OZ : axes orthorhombiques.

Oy, Oz : axes cubiques.

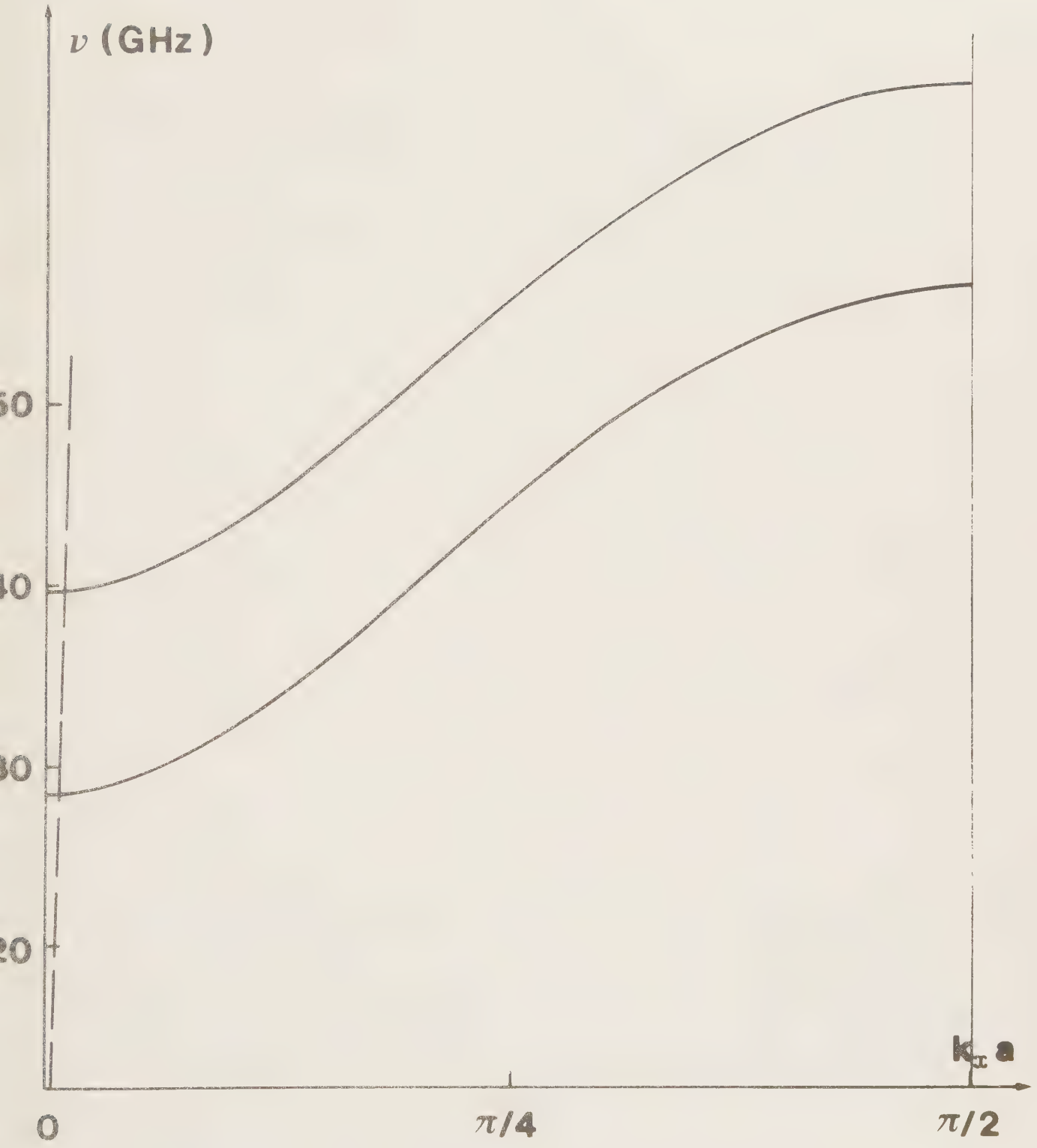


FIGURE 12 Trait plein : courbes de dispersion des ondes de spin dans la direction [111] de $GdAlO_3$ à T = 0, en présence d'un champ magnétique de 2 kG appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation.
Trait interrompu : courbe de dispersion typique des phonons acoustiques dans le même cristal.

diagramme, près de k = 0, ce qui interdit par exemple les transitions du type $\alpha\beta^{+}a$, et ce qui veut dire que les ondes de spin excitées par résonance ont la fréqunce du mode uniforme.

Nous allons nous intéresser plus spécialement aux transitions induites par les ultrasons entre les deux modes d'onde de spin (transition II, $\beta\alpha^{+}a$, fig.7) et à la résonance antiferromagnétique acoustique (transition I, $\beta^{+}a$, fig.7).

a - Transition entre les deux modes d'ondes de spin.

Cette transition a déjà été étudiée en détail[2,61]. Nous ne ferons qu'écrire les règles de sélection et rappeler brièvement les principaux résultats théoriques et expérimentaux.

La transition est décrite par le terme $\beta\alpha^{+}a$, qui provient de S_{+}^{2} donc de S_X^2, S_Y^2 ou $\{S_X, S_Y\}$. Les termes correspondants de l'hamiltonien sont :

$$\mathcal{H}'_{\beta\alpha^{+}a} = \sum_{\ell} \left\{ \left[\frac{3}{16} G_{11}(2\varepsilon_{xx}-\varepsilon_{yy}-\varepsilon_{zz}) + \frac{G_{44}}{2\sqrt{2}} \left(\frac{1}{i}\varepsilon_{xy} - \frac{1}{i}\varepsilon_{xz} + \sqrt{2}\,\varepsilon_{yz}\right) \right] S_{+}^{\ell 2} \right\} + \sum_{m} \{m\}$$

Les règles de sélection sont les suivantes :

$\vec{k}$	[100]			[010]			[001]			[110]
$\vec{u}$	[100]	[010]	[001]	[100]	[010]	[001]	[100]	[010]	[001]	[110]
ε correspondants	$\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{zz}=-\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{yy}=-\varepsilon_{zz}$	$\varepsilon_{xy}=-\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{yy}=-\varepsilon_{zz}$	$\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{zz}=\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{xy}=\varepsilon_{xz}$	$\varepsilon_{xy}=-\varepsilon_{xz}$	$\varepsilon_{xy}=\varepsilon_{xz}$	ε_{xx}	ε_{yy}
transition	oui	non	oui	non	oui	non	oui	non	oui	oui

$\vec{k}$ = vecteur d'onde ultrasonore.

$\vec{u}$ = vecteur déplacement.

L'atténuation résultante se calcule aisément dans chaque cas particulier de déformation ultrasonore. Ainsi, pour des ondes longitudinales se propageant suivant l'axe de facile aimantation ($\vec{H} // \vec{k} // \vec{u} // [010]$) on a [2] :

$$\mathcal{H}' = 2i\,KG \sum_k sh(\theta_k+\theta_{-k-q}) \left[\alpha_k^+ \beta_{-k-q} a_q - \alpha_k \beta_{-k-q}^+ a_q^+ \right]$$

$$\alpha_{dB/cm} = \frac{\pi}{\lambda^2} \frac{S^2 \left(\frac{3}{2} G_{11} - 2G_{44}\right)^2}{\rho v^3} \hbar\omega_q \sum_k sh^2(\theta_k+\theta_{-k-q}) \left(N^{\beta}_{-k-q} - N^{\alpha}_k\right) f(\omega_\alpha\, \omega_\beta\, \omega_q)$$

b - Couplage résonnant.

Il est décrit par les termes $\beta^+ a$, qui proviennent de $\{S_X, S_Z\}$ et $\{S_Y, S_Z\}$, c'est-à-dire que :

$$\mathcal{H}'_{\beta^+ a} = \sum_\ell \left[\frac{3}{4} G_{11} \{S_Z^\ell, S_Y^\ell\}(\varepsilon_{yy}-\varepsilon_{zz}) + G_{44}\sqrt{2}\, \{S_Z^\ell, S_X^\ell\}(\varepsilon_{xy}+\varepsilon_{xz}) \right] + \sum_m \left[m \right]$$

d'où les règles de sélection pour le couplage résonnant avec le mode d'onde de spin de basse fréquence (β) dans la phase antiferromagnétique :

$\vec{k}$	[100]			[010]			[001]			[110]
$\vec{u}$	[100]	[010]	[001]	[100]	[010]	[001]	[100]	[010]	[001]	[110]
ε	$\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{zz}$ $=-\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{yy}=-\varepsilon_{zz}$	$\varepsilon_{xy}=-\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{yy}=-\varepsilon_{zz}$	$\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{zz}=\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{xy}=\varepsilon_{xz}$	$\varepsilon_{xy}=-\varepsilon_{xz}$	$\varepsilon_{xy}=\varepsilon_{xz}$	ε_{xx}	ε_{yy}
couplage résonnant	non	oui	oui	oui	non	oui	non	oui	non	oui

D'après ce tableau, on voit que les ultrasons de polarisation longitudinale se propageant suivant les directions cristallographiques [100] , [010] et [001] ne donnent pas de couplage résonnant avec les ondes de spin β . Du point de vue expérimental, nous pouvons en tirer les conclusions suivantes :

- les règles de sélection écrites ne sont valables que si les ultrasons se propagent rigoureusement dans la direction indiquée et si le champ magnétique est bien orienté parallèlement à la direction [010]. Pour ce qui est de la propagation ultrasonore, on peut considérer qu'elle se fait bien suivant l'axe voulu puisque les cristaux sont taillés après orientation précise aux rayons X. En ce qui concerne l'orientation par rapport au champ magnétique, elle est en général beaucoup plus imprécise et l'erreur que l'on commet peut être facilement de quelques degrés ; dans ces conditions, les règles de sélection ne sont plus valables, et une raie de résonance apparaît, que l'on peut éventuellement faire disparaître si le montage expérimental permet de modifier l'orientation du cristal par rapport au champ magnétique. Ainsi, les règles de sélection nous fournissent un critère pour vérifier et si possible ajuster la bonne orientation du cristal par rapport au champ magnétique.

- Pour étudier le couplage résonnant en utilisant des directions cristallographiques simples, on devra utiliser soit des ondes ultrasonores de polarisation transversale correspondant au tableau des règles de sélection, soit des ondes longitudinales ne se propageant pas suivant les directions orthorhombiques. Etant donnée la difficulté que présente en général la propagation d'ondes transversales (rendement assez mauvais des quartz de coupe AC, et surtout transmission souvent faible des ondes transversales dans le collage entre le quartz et le cristal), la seconde solution sera en général plus facile à mettre en œuvre , par exemple en utilisant la direction [110] . Les avantages sont les suivants : direction facile à repérer aux rayons X ; un seul terme de déformation (ε_{yy}),donc écriture simple de l'hamiltonien d'interaction.

Pour des ultrasons de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe [110] , les termes conduisant au couplage résonnant sont $\{S_Z^{\ell}, S_Y^{\ell}\}$ et $\{S_Z^{m}, S_Y^{m}\}$, donc :

$$\mathcal{H}' = \frac{3}{4} G_{11} \left[\sum_{\ell} \{S_Z^{\ell}, S_Y^{\ell}\} + \sum_{m} \{S_Z^{m}, S_Y^{m}\} \right] \varepsilon_{yy}$$

soit, en fonction des opérateurs de création et d'annihilation de phonons et de magnons (transformation de Holstein Primakoff au premier ordre puis de Bogoliubov dans la phase antiferro), en tenant compte de la périodicité du réseau et en ne retenant que le couplage avec le mode β :

$$\mathcal{H}' = \frac{3}{4} G_{11} \left(\frac{\hbar\omega}{2Mv_{us}^2} \right)^{1/2} S(2S)^{1/2} (sh\theta_q - ch\theta_q)(a_q \beta_q^{+} + a_q^{+} \beta_q)$$

L'atténuation ultrasonore résultante s'écrit :

$$\alpha_{dB/cm} = 1{,}2\, G_{11}^2\, S^3 \frac{\omega}{Mv_{us}^3 \hbar} (ch\theta_q - sh\theta_q)^2 \frac{T_2}{1+T_2^2 (\omega-\omega_{spin})^2}$$

et l'atténuation maximum :

$$\alpha_{max} = 1{,}2\, G_{11}^2\, S^3 \frac{\omega}{Mv_{us}^3 \hbar} (ch\theta_q - sh\theta_q)^2\, T_2$$

Nous avons introduit le paramètre T_2 qui représente le temps de vie des ondes de spin excitées par la résonance, et nous avons supposé que la distribution des fréquences d'ondes de spin à vecteur d'onde donné suivait une loi lorentzienne. En pratique, on mesure une atténuation en fonction du champ magnétique, et, dans la mesure où la raie de résonance est bien définie, on en déduit une largeur de raie ΔH (largeur à mi-hauteu Dans le cas d'une lorentzienne et en prenant g = 2 (c'est-à-dire $\omega_\beta = \omega_o - 2\mu_B H$), on a la relation (voir appendice 3) : $T_2 = \frac{10^{-7}}{\Delta H}$

La détermination de l'atténuation maximum et de la largeur de raie permet donc d'évaluer dans ce cas la constante de couplage magnétoélastique G_{11}. Si on fait les mêmes mesures avec une autre direction de propagation et de polarisation (par exemple $\vec{k} \parallel [001]$, $\vec{u} \parallel [010] \rightarrow \varepsilon_{xy} = \varepsilon_{xz}$) , c'est G_{44} que l'on peut alors déterminer ; l'atténuation maximum dans ce cas est donnée par :

$$\alpha_{max} = 2{,}15 \; G_{11}^2 \; S^3 \frac{\omega}{M v_{us}^3 \hbar} \; (ch\theta_q + sh\theta_q)^2 \; T_2$$

L'atténuation à la résonance antiferromagnétique acoustique est dans tous les cas proportionnelle à la fréquence ultrasonore.

Remarque : Nous avons introduit un seul temps de relaxation T_2 et avons supposé que c'était le même T_2 qui intervenait pour différents cas de couplage résonnant entre les ultrasons et les ondes de spin. Ceci n'est pas exact en toute rigueur, et cette approximation n'est valalbe que si le spectre des ondes de spin n'est pas trop anisotrope ; de plus, nous verrons par la suite que la précision obtenue sur les mesures de largeurs de raie ne permet pas de distinguer des temps de relaxation différents suivant les différentes directions de propagation et de polarisation ultrasonores.

L'étude de la largeur de la raie de résonance en fonction de la température permet d'étudier les variations du temps de vie des ondes de spin à $k \simeq 0$ en fonction de la température ; la méthode ultrasonore donne des résultats plus facilement exploitables que la méthode de résonance antiferromagnétique électronique pour laquelle les mesures sont souvent difficiles à interpréter à cause des modes magnétostatiques qui se superposent à la résonance du mode uniforme, et pour d'autres raisons (problème des images magnétiques, désaccord de la cavité à la résonance...) qui font par exemple que le signal observé dépend de la forme de l'échantillon et de sa position dans le guide d'onde ou la cavité électromagnétique.

IV-4 . *Couplage résonnant dans la phase floppée.*

L'hamiltonien de couplage écrit plus haut dans le cas général en utilisant les composantes des spins dans les axes orthorhombiques est réécrit en fonction des composantes $\tilde{S}_\alpha$ définies plus haut. En ne retenant que les termes qui conduisent à un couplage résonnant, on obtient :

$$\mathcal{H}' = \mathcal{H}'_\alpha + \mathcal{H}'_\beta$$

avec :

$$\mathcal{H}'_\alpha = \sum_\ell \left\{ \sin\theta \cos\theta S\tilde{S}^\ell_x \left[-\frac{3}{2} G_{11}(2\varepsilon_{xx}-\varepsilon_{yy}-\varepsilon_{zz}) + 4G_{44}\varepsilon_{yz} \right] - 2\sqrt{2}\, G_{44} \sin\theta(\varepsilon_{xy}-\varepsilon_{xz}) S\tilde{S}^\ell_y \right\} - \sum_m \{m\}$$

$$\mathcal{H}'_\beta = \sum_\ell \left\{ \cos\theta \; S\tilde{S}^\ell_y \, G_{11}(\varepsilon_{yy} - \varepsilon_{zz}) + 2\sqrt{2} \cos 2\theta \; S\tilde{S}^\ell_x (\varepsilon_{xy} + \varepsilon_{xz}) \right\} + \sum_m \{m\}$$

Les règles de sélection sont les suivantes :

$\vec{k}$	[100]			[010]			[001]			[110]
$\vec{u}$	[100]	[010]	[001]	[100]	[010]	[001]	[100]	[010]	[001]	[110]
ε	$\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{zz}$ $=-\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{yy}=-\varepsilon_{zz}$	$\varepsilon_{xy}=-\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{yy}=-\varepsilon_{zz}$	$\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{zz}=\varepsilon_{yz}$	$\varepsilon_{xy}=\varepsilon_{xz}$	$\varepsilon_{xy}=-\varepsilon_{xz}$	$\varepsilon_{xy}=\varepsilon_{xz}$	ε_{xx}	ε_{xy}
couplage mode ω_1	oui	non	oui	non	oui	non	oui	non	oui	oui
couplage mode ω_2	non	oui	non	oui	non	oui	non	oui	non	oui

Remarque : Nous avons supposé que les spins dans la phase floppée se trouvaient dans le plan (100), conformément aux résultats d'autres auteurs[55,57]. Si les spins se trouvaient dans le plan (001), les règles de sélection seraient changées pour des polarisations longitudinales suivant [001] et [110] : il n'y aurait pas de couplage résonnant avec le mode de basse fréquence dans ces deux cas. Les règles de sélection ont été déjà utilisées dans le cas de MnF_2[62] pour déterminer le plan dans lequel se trouvent les spins dans la phase floppée de ce cristal.

L'atténuation ultrasonore se calcule aisément par la méthode décrite au chapitre précédent. Nous allons étudier plus spécialement le couplage avec le mode α. Toutes les ondes ultrasonores de polarisation longitudinale se propageant suivant les axes orthorhombiques du cristal sont couplées seulement avec le mode α. Par exemple, pour $\vec{k} \,//\, \vec{u} \,//\, [010]$, on a : $\varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz} = \varepsilon_{yz} = \frac{\varepsilon}{2}$, $\mathcal{H}'_\beta = 0$ et $\mathcal{H}'_\alpha$ est donné par :

$$\mathcal{H}'_\alpha = \sum_\ell \left[2 \sin\theta \cos\theta \, S \, \tilde{S}^\ell_x \left(\frac{3}{4} G_{11} + G_{44} \right) \varepsilon \right] - \sum_m [m]$$

soit

$$\mathcal{H}'_\alpha = 2i \left(\frac{3}{4} G_{11} + G_{44} \right) S^{3/2} \left(\frac{\hbar \omega_{us}}{2 M v^2_{us}} \right)^{1/2} \lambda \sin\theta \cos\theta \, (\alpha^+_q a_q - \alpha_q a^+_q)$$

donc l'atténuation est :

$$\alpha_{dB/cm} = 4{,}35 \, \frac{(+\frac{3}{4} G_{11} + G_{44})^2 \, S^3 \, \omega_{ph}}{\hbar M v^3_{us}} \, \lambda^2 \sin^2\theta \cos^2\theta \, \frac{\tau}{1 + \tau^2 (\omega_{ph} - \omega_{spin})^2}$$

et l'atténuation maximum :

$$\alpha_{max}(dB/cm) \simeq 4{,}35 \, \frac{(+\frac{3}{4} G_{11} + G_{44})^2 \, S^3 \, \omega_{ph}}{\hbar M v^3_{us}} \, \tau \, \lambda^2 \sin^2\theta \cos^2\theta$$

Pour toutes les déformations qui font intervenir ε_{xx}, ε_{yy}, ε_{zz} et (ou) ε_{yz}, l'expression de l'atténuation est donnée par la formule qui vient d'être décrite, dans laquelle seule change suivant les cas la constante de couplage G, qui est ici égale à $\frac{3}{4} G_{11} + G_{44}$. Nous ne considérerons, dans les commentaires qui suivent, que ce type de déformations car il correspond aux mesures quantitatives que nous avons pu faire.

Les remarques à faire sur ces expressions d'atténuation sont les suivantes :

1 - Dans tous les cas, l'atténuation est proportionnelle au carré d'une constante de couplage magnétoélastique G, et à un facteur qui dépend du champ magnétique : $\lambda^2 \sin^2\theta \cos^2\theta$. Les ondes de spin qui interviennent ayant un vecteur d'onde très petit, nous pouvons prendre pour valeur de λ son expression pour k = 0

$$\lambda_k = \left[\frac{H_E(1-\gamma_k) + H_{A1}}{H_E(1-\gamma_k \cos^2\theta) - (H_A - H_{A1} - \gamma_k H_{A2}) \sin^2\theta} \right]^{1/4}$$

d'où

$$\lambda(k = 0) = \left(\frac{H_{A1}}{2H_E - H_A + H_{A1} + H_{A2}} \right)^{1/4} \frac{1}{\sqrt{\sin\theta}}$$

L'atténuation est donc proportionnelle à $G^2 \sin\theta \cos^2\theta$. La variation de ce coefficient en fonction du champ magnétique est représentée sur la figure 13. Nous voyons que le couplage s'annule pour H = 0 et à la transition vers la phase paramagnétique, le maximum se situant relativement près de cette transition.

Notons toutefois que la courbe n'a de signification physique que pour $H > H_{sf}$, c'est-à-dire pour des valeurs du champ magnétique assez grandes pour que la phase floppée soit stable.

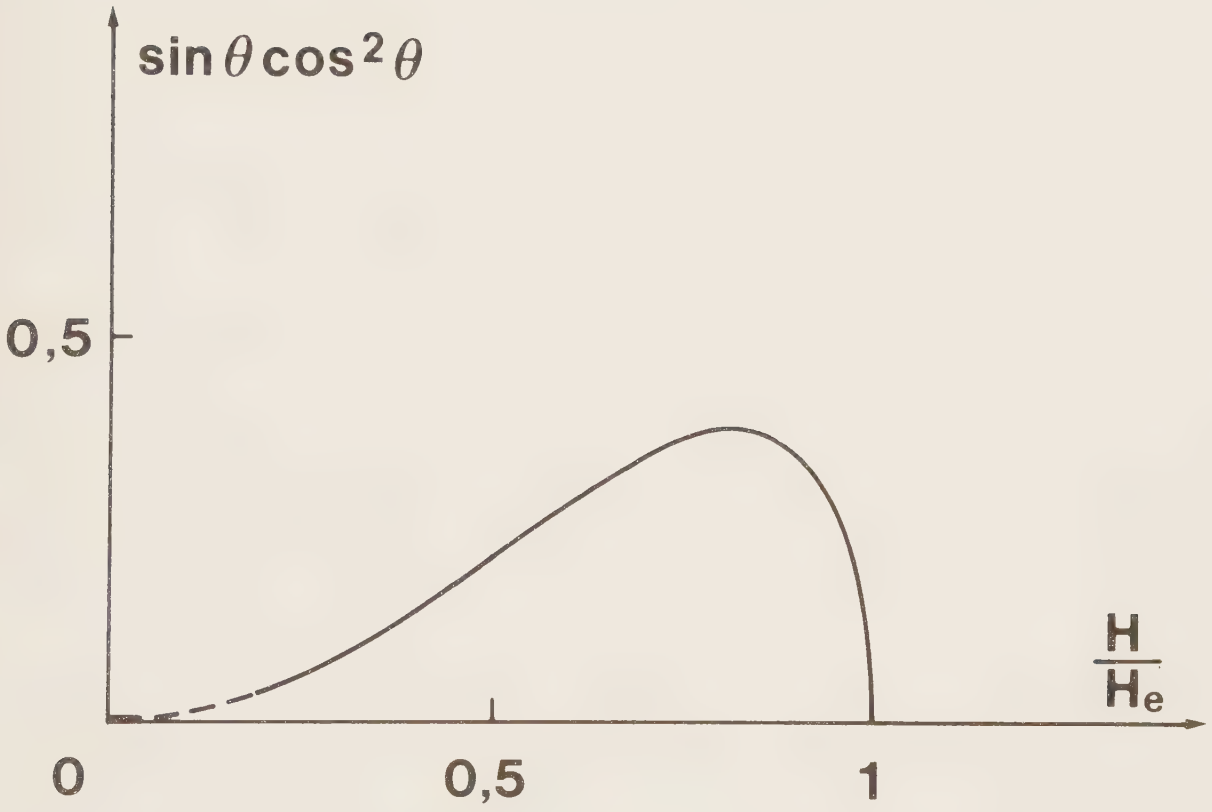


FIGURE 13 Variation du coefficient d'atténuation ultrasonore en fonction du champ magnétique dans la phase floppée.

2 - Dépendance en fréquence des ultrasons de l'atténuation maximum. L'atténuation maximum est proportionnelle à $\lambda^2\omega_{us}\ \sin^2\theta\ \cos^2\theta$ donc à $\omega_{us}\ \sin\theta\ \cos^2\theta$. D'après les courbes de dispersion des ondes de spin à k = 0, nous voyons que

$$\sin\theta = \frac{\omega_{spin}}{\omega_o} \quad \text{donc si} \quad \omega_{spin} = \omega_{us} \quad \sin\theta = \frac{\omega_{us}}{\omega_o} \quad \text{où } \omega_o$$

représente la fréquence des ondes de spin à k = 0 en champ nul.

Nous pouvons donc écrire :

$$\alpha_{max} \simeq \omega_{us}^2 \left(1 - \frac{\omega_{us}^2}{\omega_o^2}\right)$$

Pour une résonance qui se produit près de la transition vers la phase paramagnétique, $\frac{\omega^2_{us}}{\omega^2_o} \ll 1$ et l'atténuation maximum est dans ces conditions proportionnelle à ω^2. Nous considérerons ce résultat valable pour $\frac{\omega^2_{us}}{\omega^2_o} \lesssim \frac{1}{10}$

Un autre paramètre peut varier en fonction de la fréquence des ondes de spin : leur temps de relaxation. Nous n'avons à ce sujet aucune information. Il sera considéré ici comme un paramètre phénoménologique, parce que nous ne savons pas dire dans quelles proportions il correspond à un temps de vie "vrai" des ondes de spin résultant des interactions magnons-magnons et magnons-phonons, et à une largeur inhomogène due aux défauts du cristal. Nous ferons cependant l'approximation suivante : à une température donnée, le temps de relaxation des ondes de spin à k = 0 sera supposé indépendant de la fréquence, c'est-à-dire de la valeur du champ magnétique appliqué. Ce temps sera pris comme un paramètre ajustable dans le calcul des courbes théoriques d'atténuation ultrasonore, et nous verrons que cette méthode conduit à un ordre de grandeur raisonnable.

CHAPITRE V

METHODE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

V-1 . *Méthode expérimentale.*

L'appareillage que nous avons utilisé pour faire les mesures comprend essentiellement deux parties distinctes :

- Montage hyperfréquence pour la production et la détection des ondes ultrasonores.

- Dispositif cryogénique , et électroaimant ou bobine supraconductrice pour créer le champ magnétique.

a - Production et détection des ondes ultrasonores

Les expériences rapportées ici ont été réalisées avec des ultrasons de fréquence comprise entre 0,5 et 9,5 GHz ; plus exactement, nous avons utilisé la gamme 0,5 - 1,8 GHz et des fréquences autour de 9 GHz. A ces fréquences, la longueur d'onde ultrasonore est petite ($\simeq$ 0,5 µ à 10 GHz, 5µ à 1 GHz), et il est exclu (9 GHz) ou très difficile (1 GHz) d'exciter les ultrasons par résonance géométrique d'un quartz, même sur une harmonique élevée. La méthode utilisée est celle qui a été mise au point par Jacobsen [1]. Elle consiste à engendrer les ultrasons dans un quartz dont une face libre est placée dans la région de champ électrique intense d'une cavité électromagnétique de type rhumbatron. Les ultrasons, émis à la surface du quartz, ont la fréquence du champ hyperfréquence excitateur ; ils se propagent dans le quartz puis dans le cristal et sont ensuite soit réfléchis et détectés par effet piézoélectrique inverse dans la même cavité dans le cas d'expériences en réflexion, soit transmis dans un second cristal de quartz

et détectés dans une autre cavité accordée à la même fréquence dans le cas d'expériences en transmission. Il faut opérer en transmission lorsque les mesures nécessitent que le parcours de l'onde ultrasonore dans le cristal soit petit (en pratique < 4 mm). Le rendement piezoélectrique étant faible ($\simeq 10^{-4}$, donc 10^{-8} au total), le signal en retour est détecté puis amplifié par un récepteur superhétérodyne classique, permettant de détecter des impulsions de 10^{-13} watts. Une partie du signal est alors prélevée par un échantilloneur-intégrateur qui permet de le détecter même s'il se trouve noyé dans un bruit de fond le dépassant de 30 dB.

Le schéma de principe du montage hyperfréquence est représenté sur la figure 14 dans le cas de mesures en réflexion. A 9 GHz, le générateur hyperfréquence est un magnétron dont l'impulsion de sortie doit être fortemen atténuée pour éviter les claquages dans la cavité électromagnétique.

Les cavités utilisées sont de type réentrant de façon à ce qu'il existe une région où le champ électrique hyperfréquence soit particulièrement intense. Pour les expériences à 9 GHz dans la bobine supraconductrice, le diamètre disponible est faible (27 mm), et nous avons du utiliser des cavités de petites dimensions montées au bout d'une ligne coaxiale de diamètre 3 mm. Il est possible dans ces conditions d'opérer en réflexion ou en transmission en propageant les ultrasons parallèlement ou perpendiculairement au champ magnétique appliqué. Sur la figure 15, nous avons représenté le schéma du dispositif utilisé en transmission verticale à 9 GHz. Entre 0,5 et 1,8 GHz, la forme des cavités est telle que seule la propagation verticale (parallèle au champ magnétique) est possible.

b - Dispositif cryogénique. Champ magnétique.

L'aluminate de gadolinium ayant une température de Néel de 3,9°K, toutes les mesures ont été faites en immergeant les cavités et le cristal dans l'hélium liquide et en faisant varier la température par pompage sur le bain d'hélium. La gamme de températures ainsi accessible va de 1,4 à 4,2°K ; la détermination de T se fait en mesurant la pression, et la stabilisation sur une valeur déterminée en ajustant le débit de pompage.

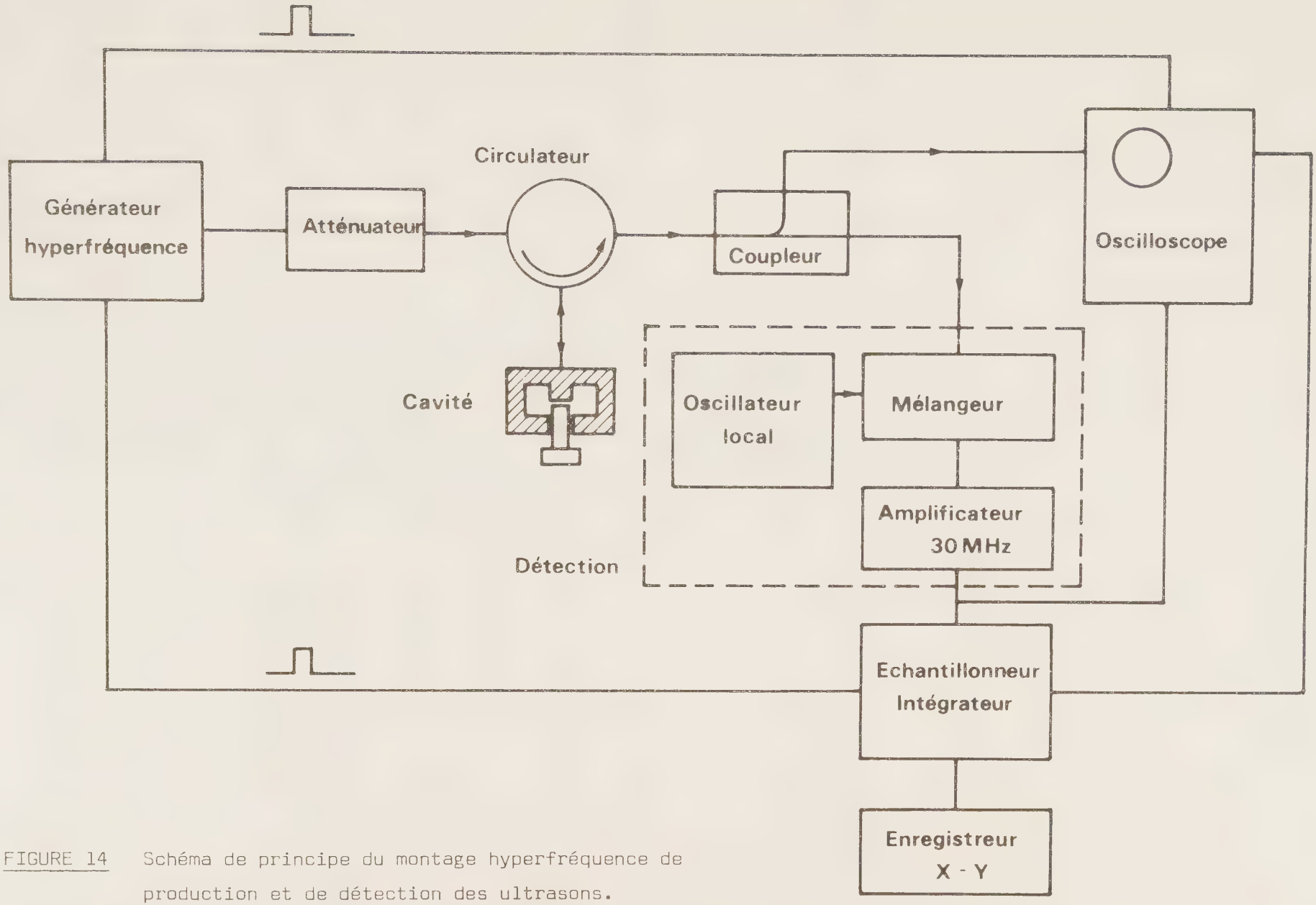


FIGURE 14 Schéma de principe du montage hyperfréquence de production et de détection des ultrasons.

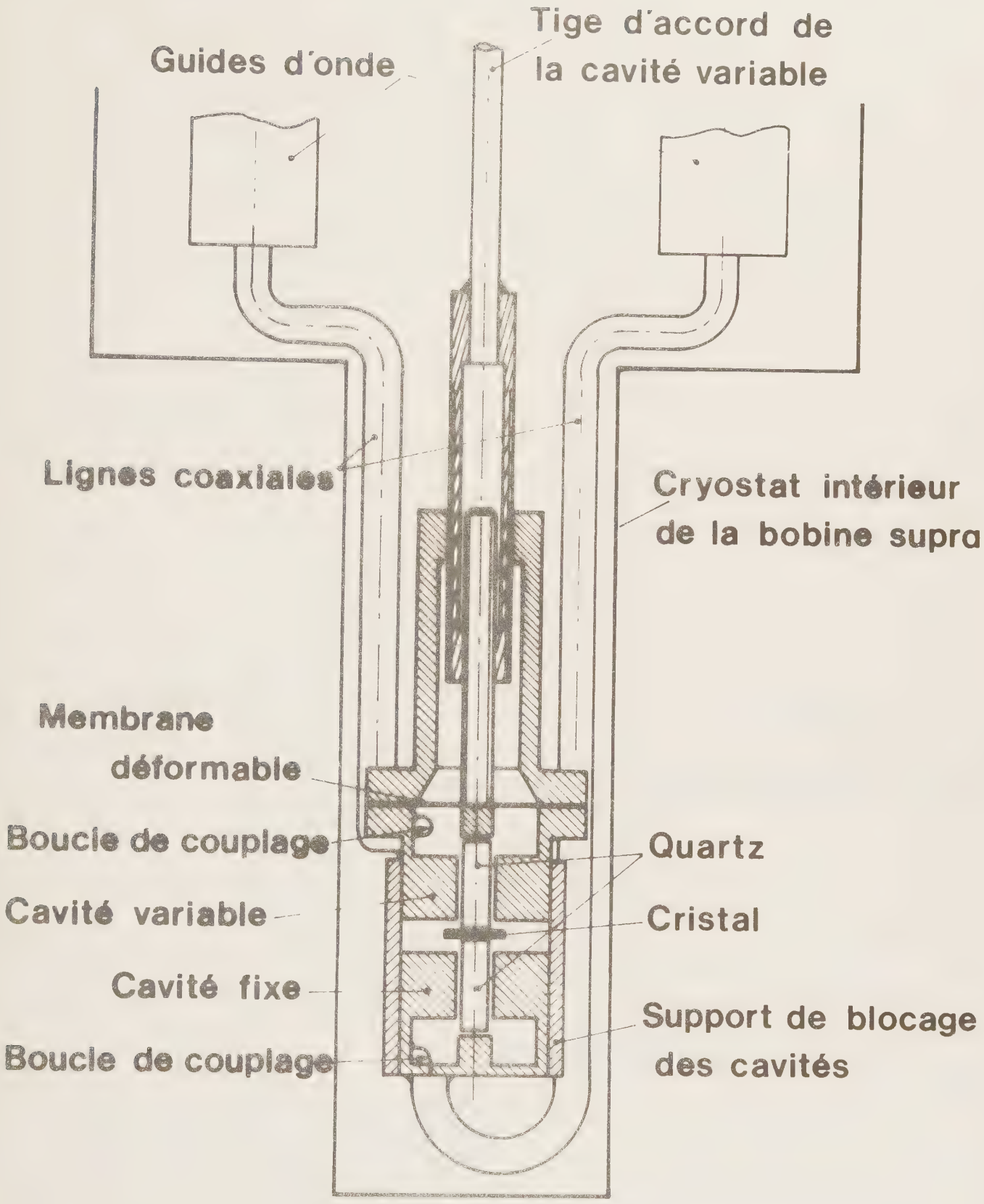


FIGURE 15 Schéma du montage utilisé en transmission verticale à 9 GHz dans le cryostat de la bobine supraconductrice.

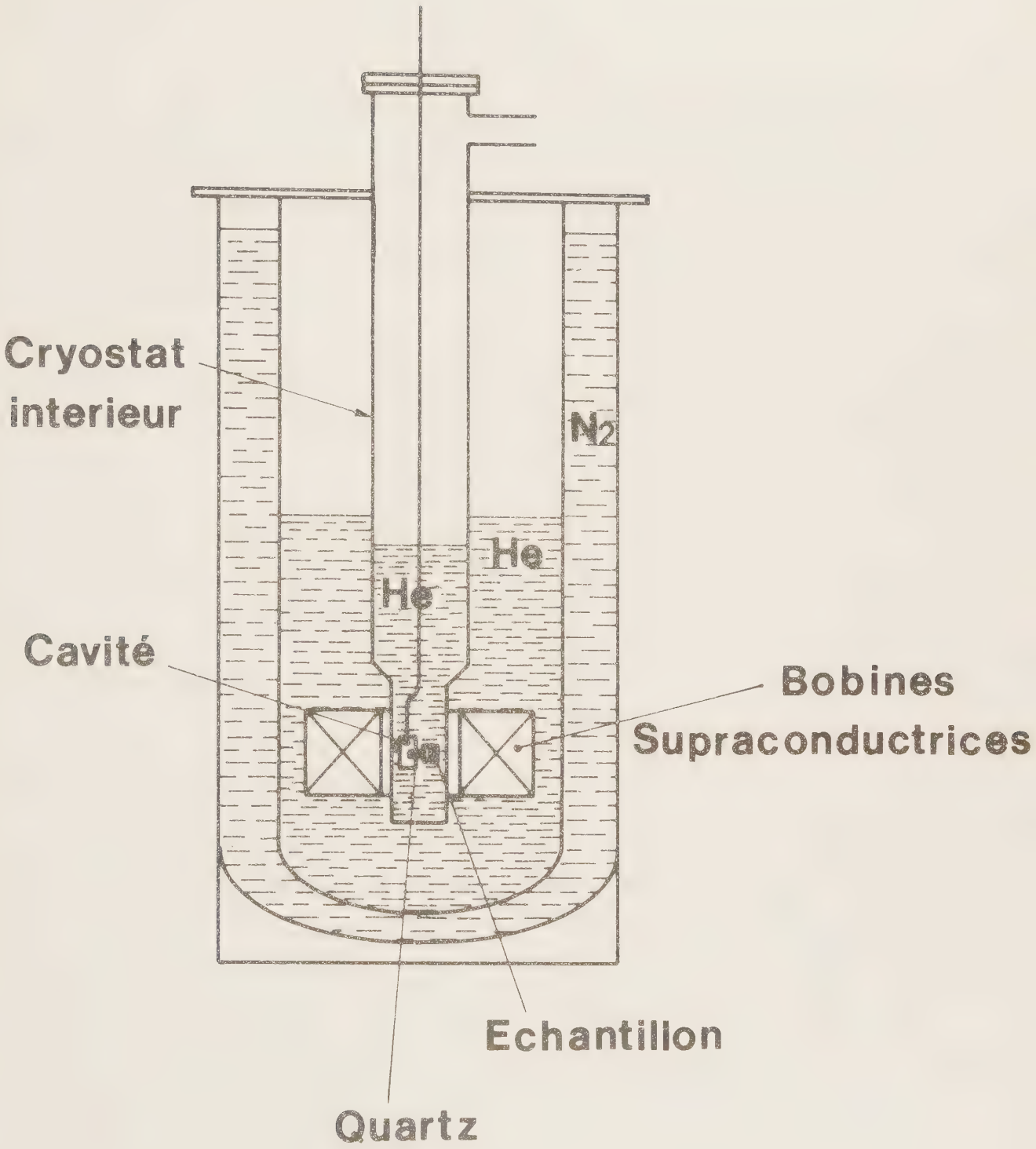


FIGURE 16 Schéma du cryostat de la bobine supraconductrice.

Le champ magnétique était produit soit par un électroaimant dans le cas des expériences à des champs inférieurs à 12 kG (étude de la phase antiferromagnétique), soit par une bobine supraconductrice pouvant délivrer jusqu'à 100 kG, avec une homogénéité relative de 0,5 % dans un volume de 1 cm^3. Le champ magnétique dans l'électroaimant était mesuré directement par l'intensité du courant délivré par l'alimentation ; pour la bobine, en raison de l'hystérésis qui peut atteindre plusieurs milliers de gauss, le champ a été mesuré à l'aide d'une sonde de Hall placée le plus près possible du cristal, et que l'on peut étalonner lors de la première montée en champ magnétique ; l'utilisation de la sonde de Hall permet d'enregistrer directement le signal ultrasonore en fonction du champ magnétique en appliquant la tension de Hall sur l'axe X de l'enregistreur.

Dans le cas de l'électroaimant, tout le dispositif cryogénique (dewar à azote, cryostat à hélium) était placé entre les pièces polaires écartées de 20 cm. Les mesures dans la bobine ont nécessité l'emploi d'un cryostat intérieur dans lequel on pouvait faire varier la pression d'hélium : le schéma du montage est représenté sur la figure 16.

V-2 . *Résultats expérimentaux.*

Nous présentons ici des résultats de mesures de variations de l'atténuation ultrasonore en fonction de la température et du champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation de $GaAlO_3$ (axe [010]) pour des valeurs de champ magnétique variant de 0 à 50 kG environ, c'est-à-dire suffisantes pour étudier les trois phases (antiferro, flop, para). Pour des raisons de commodité (dérive des cavités lorsqu'on fait varier la température),toutes les mesures ont été faites à température fixe en faisant varier le champ magnétique, c'est-à-dire que le diagramme de phase (H,T) (fig.10) a été exploré verticalement.

Dans la phase antiferromagnétique, toutes les mesures ont été faites à des fréquences ultrasonores de l'ordre de 9 GHz. Dans les autres phases, nous avons opéré à 9GHz et dans la gamme 0,5 à 1,8 GHz. Nous serons amenés, pour interpréter nos résultats, à faire appel à d'autres mesures effectuées

dans les deux gammes de fréquence avec un champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, mais que nous ne rapporterons pas en détail ici.

a - Phase antiferromagnétique.

Dans la phase antiferromagnétique, suivant les directions de propagation et de polarisation de l'onde ultrasonore, nous avons pu observer :

- une petite raie d'atténuation centrée autour d'une valeur de champ magnétique de l'ordre de 1500 gauss.
- une raie d'atténuation forte qui apparaît vers 9 kG à basse température ($T \simeq 1,7°K$).
- une forte variation d'atténuation aux environs de 12 kG, c'est-à-dire au voisinage de la transition spin-flop.

Un enregistrement typique est représenté sur la figure 17, dans un cas où ces trois phénomènes sont visibles à la fois.

Nous ne reviendrons pas en détail sur l'étude de la raie à 1500 G, sinon pour rappeler que son amplitude est toujours faible (de l'ordre de 1 dB/cm au maximum), et que nous n'avons pu la voir qu'à des températures inférieures à 2,2°K. Pour ce qui est de la transition spin-flop, nous l'examinerons mieux dans le paragraphe suivant qui est relatif aux mesures dans la phase floppée.En ce qui concerne la raie d'atténuation forte avant la transition spin-flop, nous avons fait deux types de mesures :

- mesures d'atténuation pour différentes directions de polarisation et de propagation ultrasonore.
- étude de la raie (position, largeur, intensité) en fonction de la température, dans le cas d'ondes longitudinales se propageant suivant l'axe [110].

Pour différentes directions de propagation et de polarisation des ultrasons, nous avons obtenu les résultats suivants :

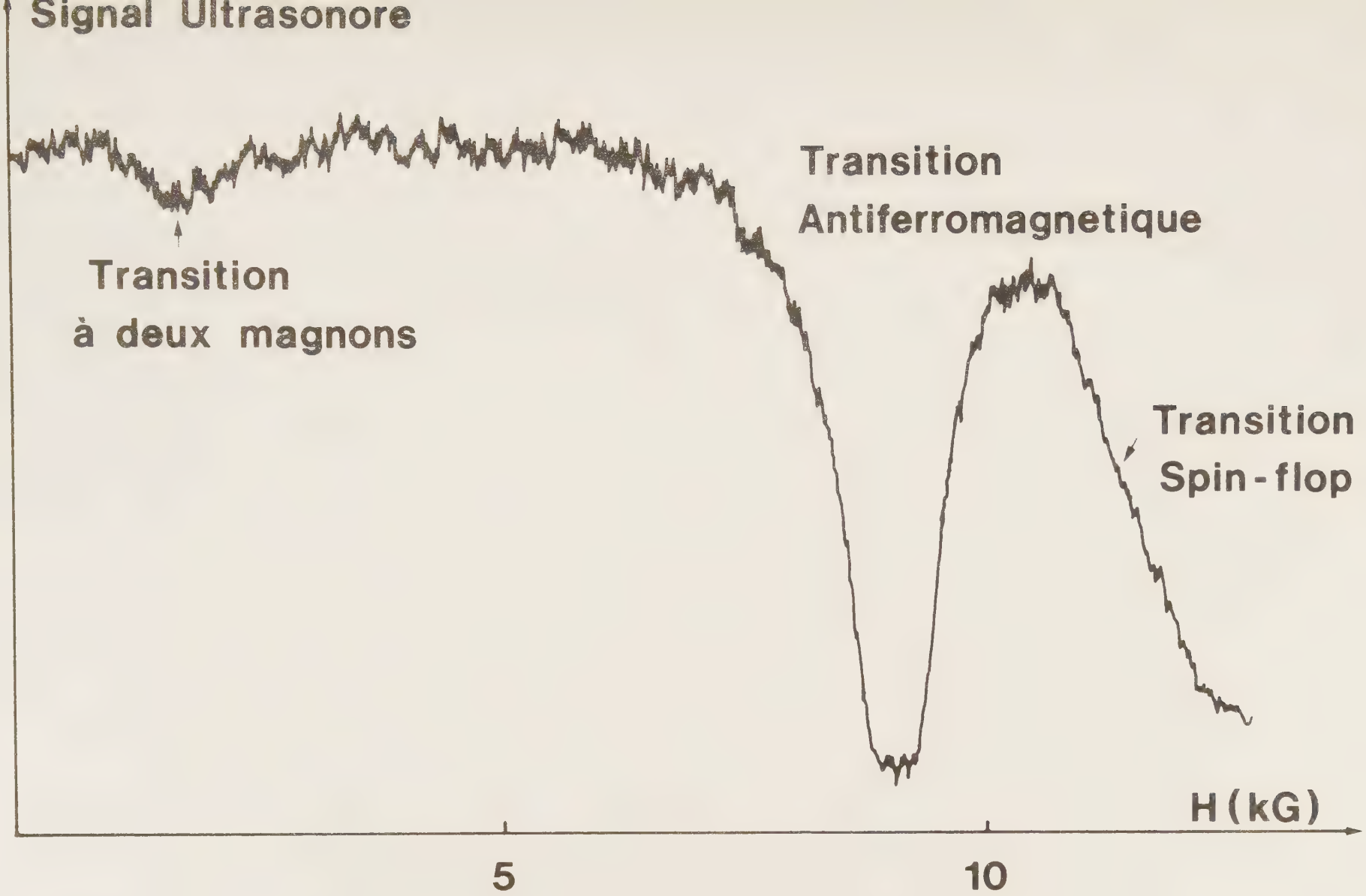


FIGURE 17 Signal ultrasonore en fonction du champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe [010] de $GdAlO_3$.
Fréquence ultrasonore = 8,6 GHz, $\vec{k}$ // [110], $\vec{u}$ // [001]
T = 1,7°K.

Ondes longitudinales :

- $\vec{k} // \vec{u} // [010]$: pas de raie d'absorption à 9 kG tant que le champ magnétique se trouve bien aligné suivant l'axe de facile aimantation. Une désorientation de l'ordre de 1 à 2° suffit pour faire apparaître la raie.
- $\vec{k} // \vec{u} // [001]$: même résultat que précédemment.
- $\vec{k} // \vec{u} // [110]$: raie très intense vers 9 kG à 1,7°K : l'atténuation ultrasonore maximum est de l'ordre de 1000 dB/cm à cette température, et la largeur de raie $\Delta H \simeq 300$ gauss. Nous avons suivi l'évolution de cette raie en fonction de la température entre 1,7 et 3,5°K. Quelques enregistrements sont représentés sur la figure 18 : il faut remarquer le déplacement du maximum d'atténuation la diminution de l'amplitude et l'augmentation de la largeur de la raie lorsque la température augmente. Nous avons reporté sur la figure 19 les variations de la largeur à mi-hauteur de la raie en fonction de la température. Le point à 1,4°K correspond à une mesure faite avec $\vec{k} // \vec{u} // [001]$, le champ magnétique étant légèrement désorienté par rapport à l'axe [010].Bien que nos mesures n'aient pas pu être faites au-dessous de 1,4°K, nous pouvons cependant remarquer que la largeur de raie mesurée ne tend pas vers zéro lorsque la température tend vers zéro.

Ondes transversales :

- $\vec{k} // [110]$, $\vec{u} // [001]$: raie de résonance intense (Fig.17).
- $\vec{k} // [001]$, $\vec{u} // [010]$: raie de résonance intense vers 9 kG à 1,6°K : $\alpha_{max} \simeq 150$ dB/cm.

b - Phase ferrimagnétique et paramagnétique.

Nous avons mesuré les variations de l'atténuation ultrasonore pour différentes directions de propagation et de polarisation, à 9 GHz et entre 0,5 et 1,8 GHz, pour des champs magnétiques allant jusqu'à 50 kG. A 9 GHz, les mesures ont été effectuées à différentes températures. Les résultats sont les suivants :

Ondes ultrasonores longitudinales $\vec{k} // \vec{u} // [010]$

- Des courbes d'atténuation à différentes températures pour des ultrasons de 9 GHz sont représentées sur la figure 20. L'atténuation est forte dans toute la phase floppée et présente un maximum vers 25 kG ; l'amplitude de ce maximum varie fortement avec la température (350 dB/cm à 1,57 K → 80 dB/cm à 2,15 K), et la position de ce maximum est fonction de T. Ce qui est à remarquer ici, c'est la très large gamme de champ magnétique pour laquelle on observe une atténuation : celle-ci est visible sur un intervalle de 30 kG. Les résultats sont donc tout à fait différents de ceux relatifs à la phase antiferromagnétique, dans laquelle on obtenait une raie de résonance de forme sensiblement lorentzienne et bien localisée en champ magnétique, du moins à basse température. Nous ne pouvons pas parler ici de raie de résonance, et la largeur en champ magnétique de l'atténuation ultrasonore n'est pas reliée de façon simple au temps de relaxation des ondes de spin. Nous verrons que ces résultats proviennent quand même d'un couplage résonnant et s'expliquent bien par la valeur de l'énergie des ondes de spin basse fréquence à k = 0 et par la dépendance du couplage phonons-magnons en fonction du champ magnétique.

- Vers 1 GHz (entre 0,5 et 1,8 GHz) l'atténuation présente un maximum vers les hauts champs, c'est-à-dire près de la transition de la phase floppée vers la phase paramagnétique. Une courbe typique est représentée sur la figure 21. Aux erreurs expérimentales près, la position de la raie est indépendante de la fréquence. L'atténuation maximum est de l'ordre de 6 dB/cm à 1,7 et à 1,8 GHz : elle est beaucoup plus faible que celle obtenue à 9 GHz. Les valeurs de l'atténuation maximum à 1,6°K en fonction de la fréquence sont les suivantes :

f(MHz)	555	690	910	1820
α_{max} (dB/cm)	0,9	1,1	1,6	6

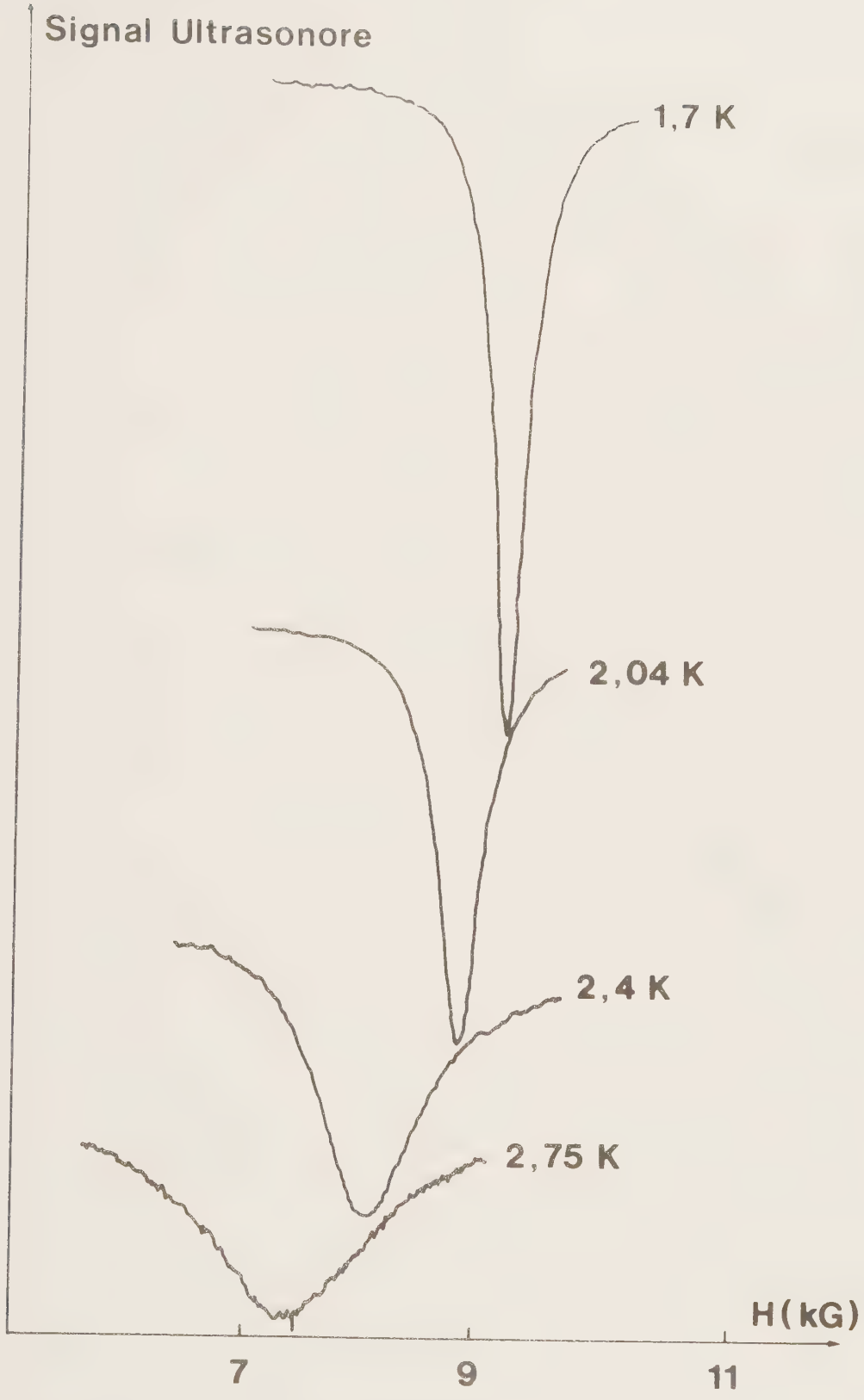


FIGURE 18 Raies de résonance antiferromagnétique acoustique dans $GdAlO_3$ à différentes températures. $\vec{H} // [010]$ $\vec{k} // \vec{u} // [110]$
Fréquence : 9 GHz. Valeurs correspondantes de l'atténuation maximum: 1,7°K : 1200 dB/cm, 2,04°K : 680 dB/cm, 2,4°K : 220 dB/cm 2,75°K : 180 dB/cm.
(le déplacement des courbes suivant l'axe vertical est arbitraire).

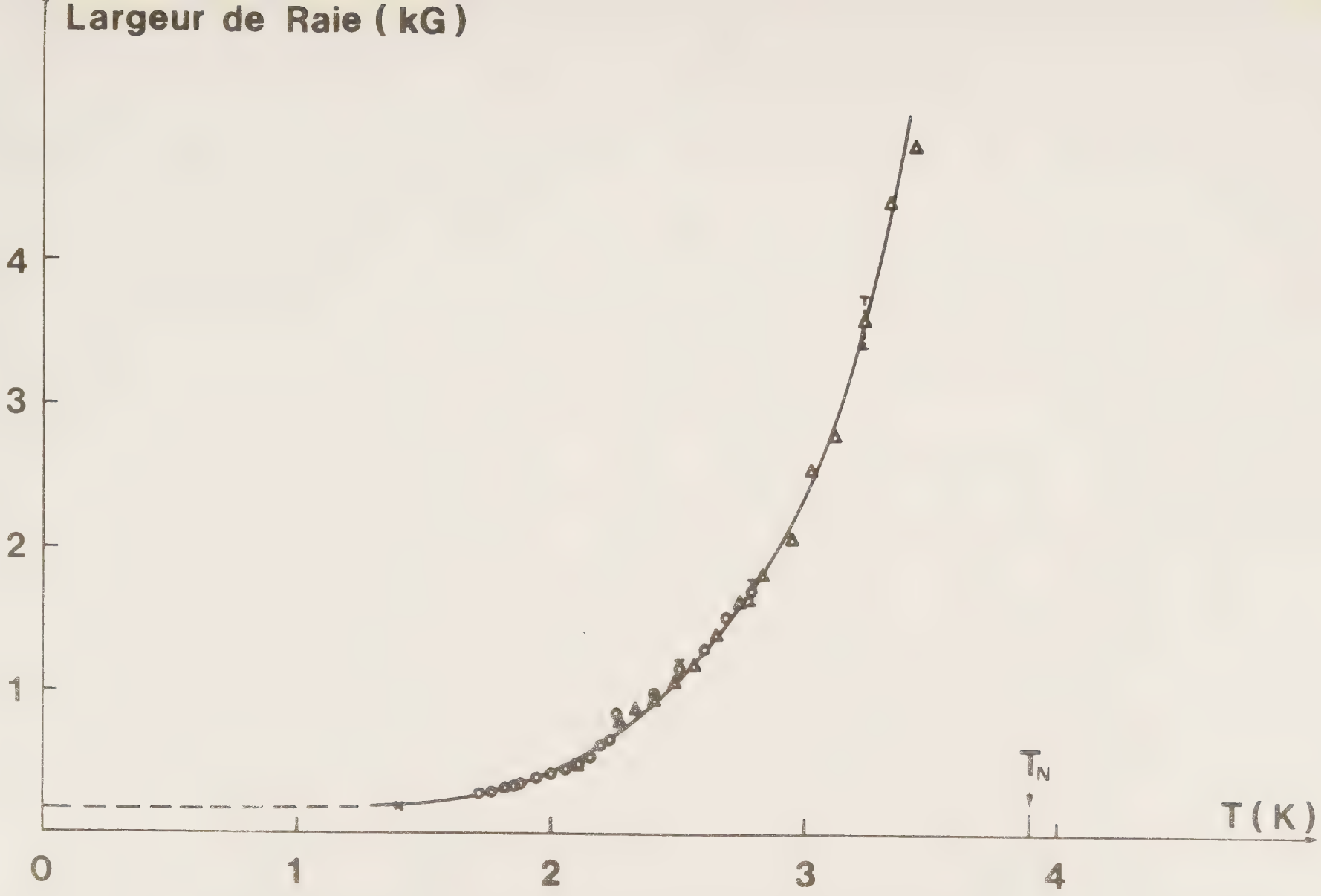


FIGURE 19 Largeur de raie de résonance antiferromagnétique acoustique dans $GdAlO_3$ en fonction de la température. Cercles : points expérimnetaux obtenus sur une plaquette de 0,15 mm d'épaisseur ; triangles : 1 mm d'épaisseur.

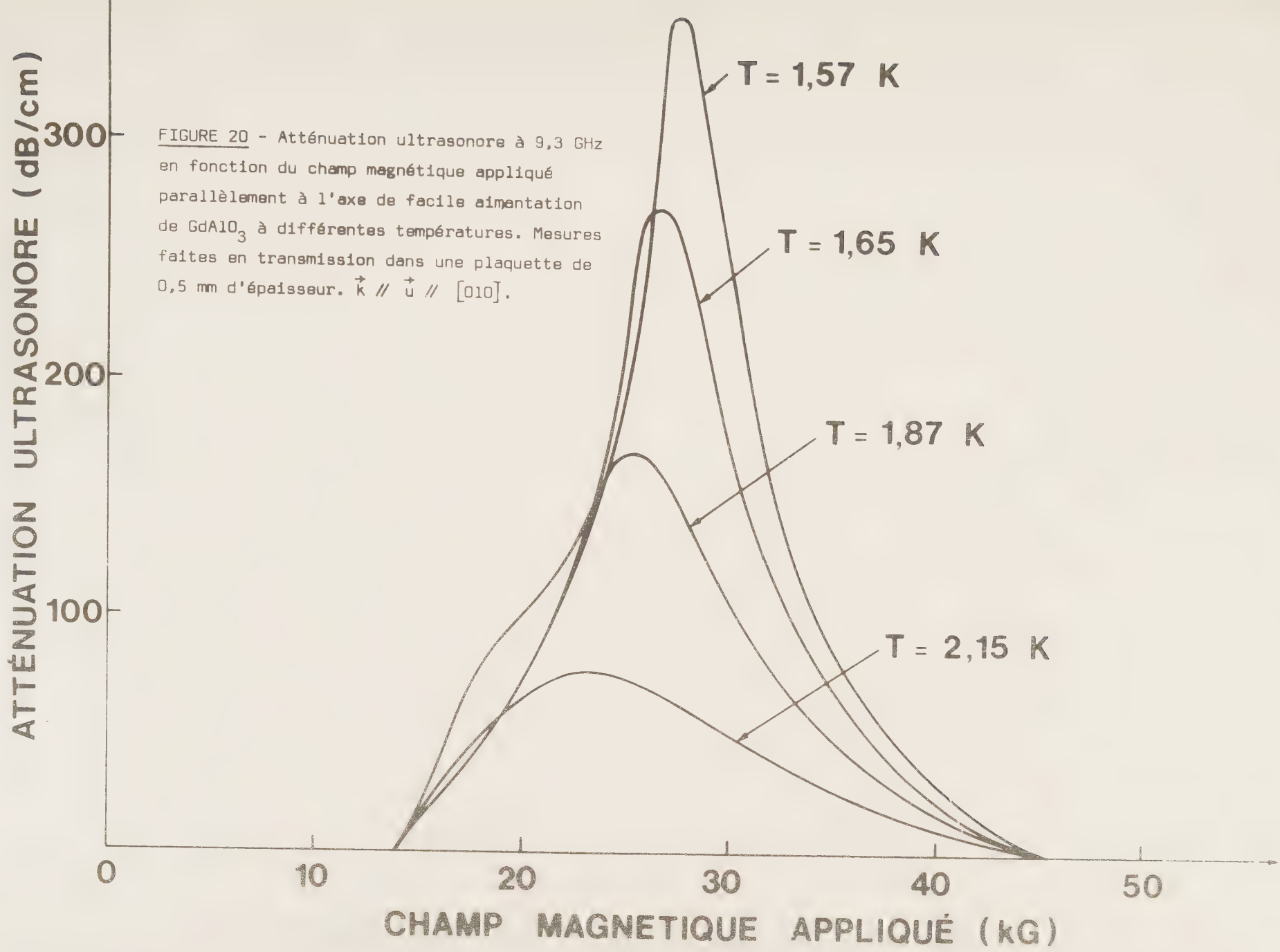
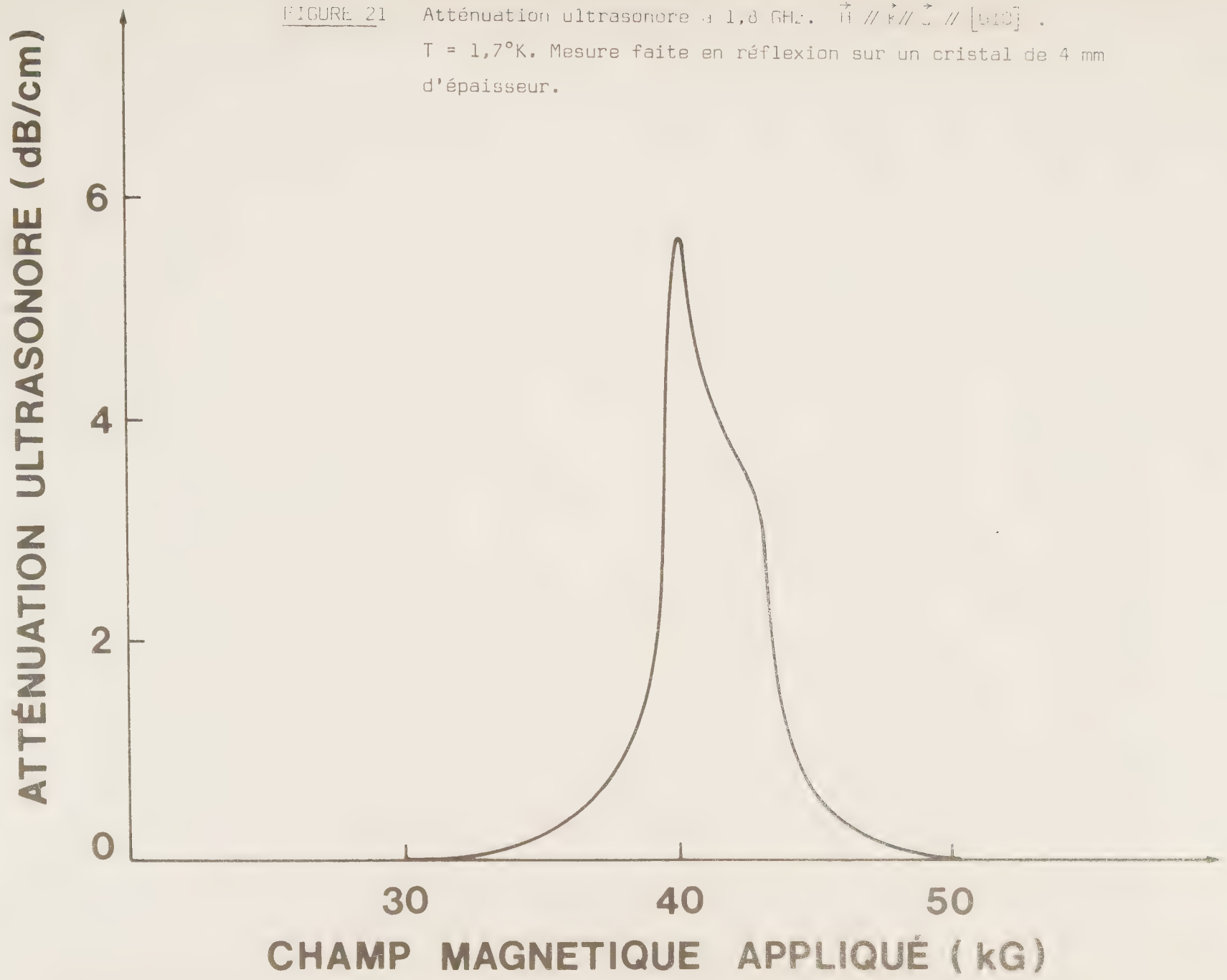


FIGURE 20 - Atténuation ultrasonore à 9,3 GHz en fonction du champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation de $GdAlO_3$ à différentes températures. Mesures faites en transmission dans une plaquette de 0,5 mm d'épaisseur. $\vec{k} \parallel \vec{u} \parallel [010]$.

FIGURE 21 Atténuation ultrasonore à 1,8 GHz. $\vec{H} // \vec{k} // \vec{L} // [110]$.
T = 1,7°K. Mesure faite en réflexion sur un cristal de 4 mm d'épaisseur.



La raie a une forme caractéristique : elle est toujours dissymétrique avec un flanc raide vers les champs magnétiques faibles et semble être double (cette dernière propriété n'a d'ailleurs pas été toujours très reproductible au cours des différentes expériences).

Ondes longitudinales $\vec{k} // \vec{u} // [001]$, 9 GHz.

Un enregistrement est représenté sur la figure 22. Nous constatons une forte atténuation dans toute la phase floppée, mais la forme de la courbe est légèrement différente de celles des courbes précédentes (Fig.20). D'autre part, l'atténuation est plus faible.

Ondes transversales $\vec{k} // [001]$ $\vec{u} // [100]$, 9 GHz.

Ici aussi, nous avons enregistré une forte atténuation dans toute la phase floppée.

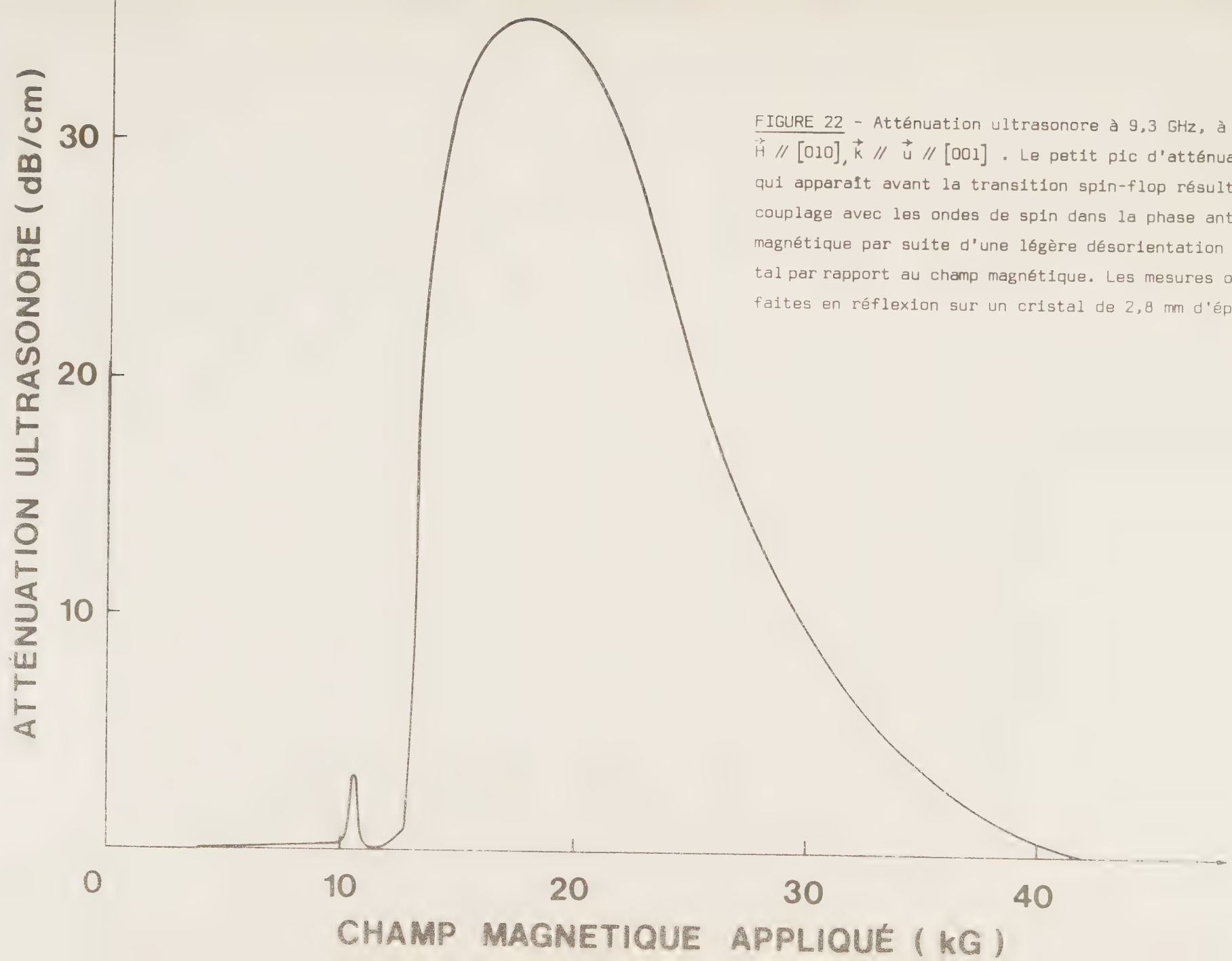


FIGURE 22 - Atténuation ultrasonore à 9,3 GHz, à 1,7°K $\vec{H} \,//\, [010]$, $\vec{k} \,//\, \vec{u} \,//\, [001]$. Le petit pic d'atténuation qui apparaît avant la transition spin-flop résulte du couplage avec les ondes de spin dans la phase antiferromagnétique par suite d'une légère désorientation du cristal par rapport au champ magnétique. Les mesures ont été faites en réflexion sur un cristal de 2,8 mm d'épaisseur.

CHAPITRE VI

INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

VI-1 . *Résultats expérimentaux dans la phase antiferromagnétique.*

Dans la phase antiferromagnétique, les variations de l'atténuation ultrasonore en fonction du champ magnétique nous donnent une petite raie d'absorption pour H ≃ 1500 Gauss, et une raie beaucoup plus intense dont le maximum se situe entre 5 et 9,5 kG suivant la température.

Les résultats relatifs à la raie à 1500 G ont déjà été interprétés en détail[2,61] et nous ne ferons que rappeler que l'absorption ultrasonore résulte de transitions entre les deux modes d'onde de spin α et β , correspondant au processus II de la figure 7 (terme $\beta\alpha^{+}a$). Nous avons pensé utiliser cette transition pour réaliser un maser à phonons en peuplant fortement le mode d'onde de spin α ; un calcul détaillé et quelques tentatives expérimentales infructueuses ont montré que l'effet devait en fait être très petit, en raison surtout des temps de relaxation des magnons, qui sont trop faibles.Bien que les conditions à remplir soient assez restrictives, il n'est cependant pas exclu que l'on puisse trouver un autre antiferromagnétique qui donne de bons résultats.

a - Résonance antiferromagnétique acoustique à basse température.

La raie intense d'absorption ultrasonore obtenue vers 9 kG à basse température est attribuée au couplage résonnant (1 phonon → 1 magnon) entre les ondes de spin et le mode d'onde de spin β près de

k = 0. Elle a en effet la bonne position en champ magnétique (environ H_{sf} - 3000 Gauss à basse température), la fréquence ultrasonore utilisée correspondant à peu près à un champ magnétique de 3000 Gauss; d'autre part, on peut remarquer que tous les résultats expérimentaux sont compatible avec les règles de sélection écrites au chapitre IV pour ce couplage.

La mesure de l'atténuation maximum et de la largeur de raie pour $\vec{k} \,//\, \vec{u} \,//\, [110]$ et $\vec{k} \,//\, [001]$, $\vec{u} \,//\, [010]$ permet comme nous l'avons vu de déterminer les constantes de couplage magnétoélastiques G_{11} et G_{44} Les valeurs que nous avons trouvées sont les suivantes :

$$G_{11} = 0,7 \pm 0,1 \text{ cm}^{-1}$$

$$G_{44} = 0,3 \pm 0,1 \text{ cm}^{-1}$$

Les valeurs de ces constantes de couplage magnétoélastique sont relativement faibles : l'ion Gd^{3+} dans $GdAlO_3$ est relativement peu couplé au réseau. Ceci n'est pas très étonnant puisque Gd^{3+} est un ion S.

Les largeurs de raie mesurées vers 1,7°K sont de l'ordre de 300 G, ce qui correspond à un temps de relaxation pour les ondes de spin de l'ordre de 3.10^{-10} s ; cette valeur est une valeur brute, en ce sens qu'elle est déterminée à la fois par les processus de relaxation des ondes de spin excitées vers les autres modes d'onde de spin et vers les phonons thermiques, et par leur diffusion par les impuretés magnétiques ou autres défauts du cristal.

Signalons enfin que l'observation de la résonance antiferromagnétique acoustique nous a été possible grâce à l'utilisation d'ondes ultrasonores de fréquence élevée, permettant de faire nettement la distinction entre la transition spin-flop et le couplage résonnant avec les ondes de spin.

b - Résonance antiferromagnétique acoustique en fonction de la température.

* Variations de la largeur de raie en fonction de la température

Pour interpréter les mesures de résonance antiferromagnétique acoustique faites en fonction de la température, nous devons faire un certain nombre d'approximations,pour tenir compte en particulier :

- des variations de la fréquence des ondes de spin à k = 0 en champ nul. Ces variations sont reliées étroitement à l'origine de l'anisotropie magnétique[63]. En fait, nous déterminerons $\omega_o(T)$ à partir des valeurs du champ de résonance, c'est-à-dire du champ correspondant à l'atténuation maximum dans nos mesures à différentes températures.

- de l'aimantation du cristal en présence d'un champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation. Etant donné que le domaine de températures exploré correspond à $0,3 < \frac{T}{T_N} < 0,9$, il n'est pas possible de négliger la susceptibilité parallèle du cristal, comme on le fait généralement pour $\frac{T}{T_N} \ll 1$. En conséquence, le champ magnétique dans l'échantillon dépend du champ extérieur et du champ démagnétisant qui n'est pas négligeable ; de plus, la fréquence des ondes de spin varie en fonction de la température, et nous prendrons comme fréquence à k = 0 l'expression suivante qui correspond en fait à une approximation de champ moléculaire[63]

$$\frac{\omega(k=0,H,T)}{\gamma} = \left[\frac{\omega_o^2(T)}{\gamma^2} + \frac{\alpha^2(T)H^2}{4} \right]^{1/2} - H\left(1 - \frac{\alpha(T)}{2}\right)$$

où $\alpha = \frac{\chi_{//}}{\chi_{\perp}}$. Les valeurs de α que nous utiliserons seront déduites des mesures de susceptibilité faites par Cashion et al[57]. Le champ H

qui intervient dans cette formule est le champ à l'intérieur du cristal, c'est-à-dire le champ extérieur corrigé par le champ démagnétisant : $H = H_{appl.} - H_D$. Toutes les mesures ont été faites sur des plaquettes que l'on peut considérer comme infiniment minces (à l'exception de la mesure à 1,4°K), avec le champ magnétique appliqué à 45° du plan de la plaquette. En première approximation, on peut donc écrire :

$$H = H_{appl.} - \frac{4\pi}{\sqrt{2}} M = H_{appl.}\left(1 - \frac{4\pi}{\sqrt{2}} \chi_{//}\right)$$

En faisant cette approximation, on suppose que les positions d'équilibre des aimantations des deux sous-réseaux ne sont pas modifiées par la présence du champ démagnétisant, ce qui n'est pas vrai en toute rigueur puisque ce champ a sa composante principale à 45° de l'axe de facile aimantation. Dans ces conditions, on peut calculer $\omega_o(T)$ si on connait le champ de résonance H_{res} en fonction de la température pour la fréquence ω, par la formule :

$$\omega_o^2(T) = \left[\frac{\omega}{\gamma} + H_{res}\left(1 - \frac{\alpha}{2}\right)\right]^2 - \frac{\alpha^2 H_{res}^2}{4}$$

La fréquence en champ nul déterminée en fonction de la température à partir de nos résultats expérimentaux est représentée sur la figure 23.

Les ondes de spin sont caractérisées par leur temps de relaxation ou par une certaine largeur en fréquence de la courbe de dispersion, que l'on peut évaluer en terme de largeur en champ magnétique définie par $\Delta H = \frac{\Delta\omega}{\gamma}$. Les mesures de résonance ayant été faites à fréquence fixe en faisant varier le champ magnétique, la largeur de raie mesurée ΔH_{mes} est reliée à la largeur ΔH par la relation :

$$\Delta H = \frac{1}{\gamma} \frac{\partial\omega}{\partial H} \Delta H_{mes}$$

où ω représente la fréquence des ondes de spin et la valeur de $\frac{\partial\omega}{\partial H}$ est à prendre pour $H = H_{res}$. On a donc :

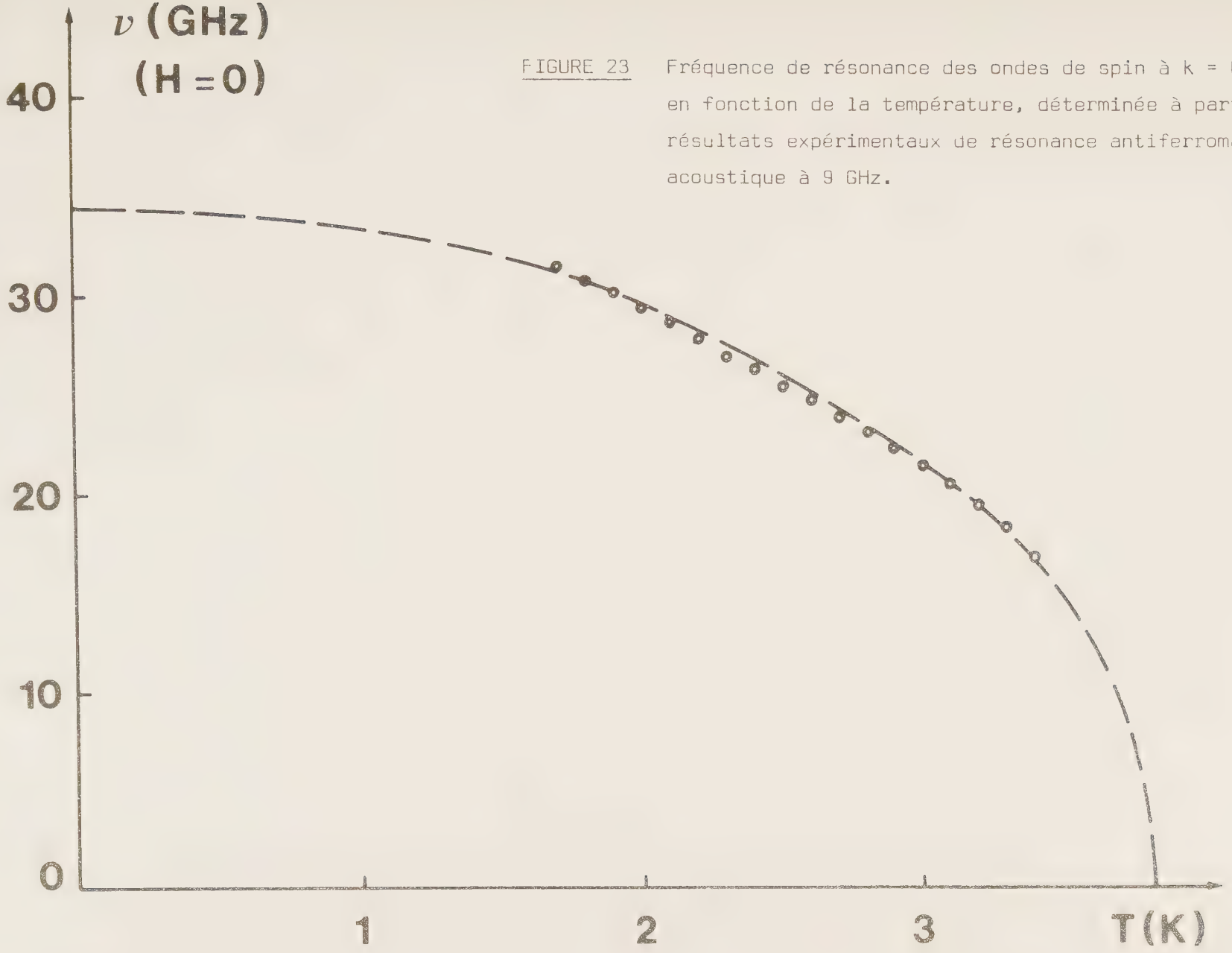


FIGURE 23 Fréquence de résonance des ondes de spin à k = 0 en champ nul en fonction de la température, déterminée à partir de nos résultats expérimentaux de résonance antiferromagnétique acoustique à 9 GHz.

$$\Delta H(T) = \frac{1}{\gamma}\left[\frac{\alpha^2 H_{res}(T)}{4}\left(\frac{\omega_o^2(T)}{\gamma^2} + \frac{\alpha^2 H_{res}^2(T)}{4}\right)^{-1/2} - (1-\frac{\alpha}{2})\right]\Delta H_{mes}(T)$$

D'autre part, d'après nos résultats expérimentaux, la largeur de raie observée ne tend pas vers zéro lorsque la température tend vers zéro, c'est-à-dire que l'on peut écrire :

$$\Delta H(T) = \Delta H_{th}(T) + \Delta H_i$$

où la largeur ΔH_i, supposée être due à la diffusion des ondes de spin par les impuretés, est considérée comme indépendante de la température. $\Delta H_{th}(T)$ par contre dépend de la température, et sa variation est fonction des mécanismes qui sont mis en jeu dans la relaxation des ondes de spin excitées à la résonance. Sur la figure 24, nous avons reporté les variations de $\Delta H_{th} = \Delta H - \Delta H_i \simeq \Delta H - 180$ Gauss en fonction de la température, en coordonnées logarithmiques. Sur toute la gamme de température explorée, nous voyons que $\Delta H_{th}(T)$ suit une loi en puissance donnée par :

$$\Delta H_{th}(T) \sim T^{5,1 \pm 0,4}$$

Notons cependant que pour des faibles valeurs de température, la précision sur ΔH_{th} est faible, car la largeur de raie provient principalement des impuretés.

L'interprétation de cette loi en T^5 n'est pas aisée. Nous pouvons essayer de la comparer aux résultats de calculs théoriques de variations de la largeur de raie en fonction de la température dans les composés antiferromagnétiques. Plus instructive sera en fait la comparaison avec des mesures faites sur d'autres cristaux antiferromagnétiques.

* Comparaison avec les théories et expériences existantes.

La comparaison de nos résultats expérimentaux avec les calculs théoriques de lois de variation de la largeur de raie en fonction de la température est difficile à faire : on ne peut en effet que souligner la diversité des résultats obtenus par les différents auteurs, qui s'explique en partie par les difficultés algébriques rencontrées pour mener à terme les calculs, et par les méthodes utilisées pour y parvenir. Les mécanismes de relaxation des ondes de spin qui ont été envisagés sont essentiellement de deux types :

- relaxation magnons-phonons. Upadhyaya et Sinha[28] ont montré que les processus mettant en jeu deux magnons et un phonon thermique dans un antiferromagnétique conduisaient à un temps de relaxation des magnons proportionnel à $\frac{1}{T^5}$. Ce résultat provient d'un calcul qui n'est valable que dans la limite des basses températures ($\frac{T}{T_N} \ll 1$, $\frac{T}{T_{sf}} \ll 1$ où T_{sf} est définie par $kT_{sf} = g\mu_B H_{sf}$), et en champ magnétique nul, ce qui ne correspond absolument pas à nos conditions expérimentales. Par ailleurs, on sait bien que la thermalisation d'un mode de magnon se fait d'abord à l'intérieur du système de spin avant de se faire vers le réseau.

- relaxation magnons-magnons. C'est ce type de relaxation qui contribue principalement au temps de relaxation des ondes de spin correspondant à la largeur de raie de résonance $\Delta H_{th}(T)$ à laquelle nous nous intéressons ici. Le processus dominant fait intervenir quatre magnons[6] : une onde de spin à $k \simeq 0$ (excitée par la résonance) est diffusée par une onde de spin thermique pour créer deux autres ondes de spin à $k \neq 0$. Nous pouvons citer les principaux résultats publiés donnant la dépendance en température de la largeur de raie à basse température ($\frac{T}{T_N} \ll 1$) et en champ nul, dans le cas où l'anisotropie n'est pas nulle[7] :

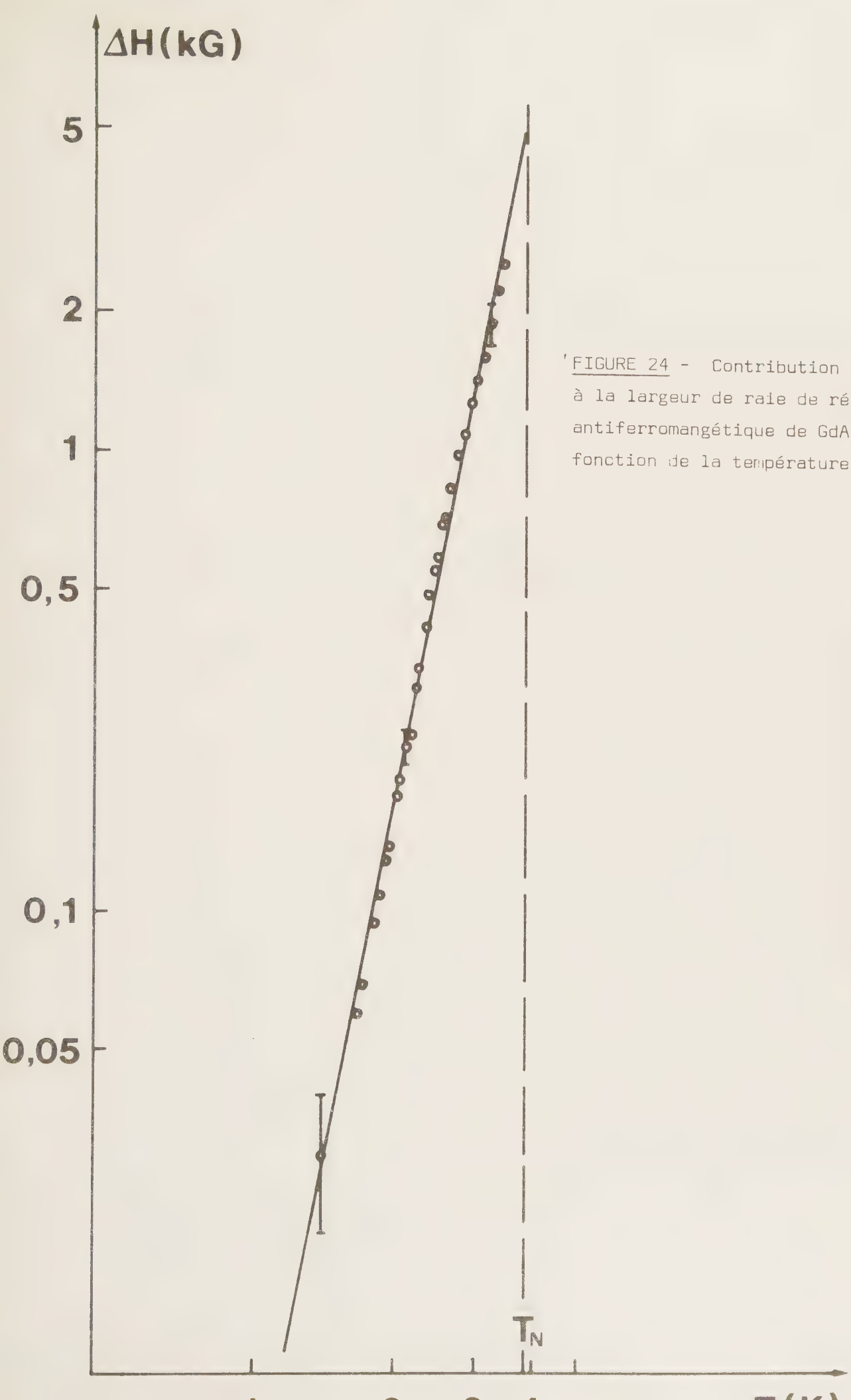


FIGURE 24 - Contribution thermiqu
à la largeur de raie de résonance
antiferromangétique de $GdAlO_3$ en
fonction de la température.

- Urushadze[64] : pour $T \gg T_{sf}$ $\Delta H \sim T$

- Turi[65], Kawasaki[66] : pour $T \ll T_{sf}$ $\Delta H \sim \frac{H_A}{H_E} T \exp\left(-\frac{T_{sf}}{T}\right)$

$T \gg T_{sf}$ $\Delta H \sim \frac{H_A^{1/2}}{H_E^{3/2}} T^2$

Les lois de variation trouvées par ces deux auteurs sont les mêmes, mais les coefficients numériques sont quelques peu différents .

- Harris[67] : $T \ll T_{sf}$ $\Delta H \sim \frac{T^2}{H_E^3} \exp\left(-\frac{T_{sf}}{T}\right)$

$T \gg T_{sf}$ $\Delta H \sim \frac{T^3}{H_E^3}$

- Harris et al[68] : en posant $\tau = \frac{kT}{g\mu_B H_E}$ et $\varepsilon_o = \frac{H_{sf}}{H_E}$

pour $\varepsilon_o \ll \tau^3 \ll 1$ $\Delta H \sim H_E \varepsilon_o^2 \tau^3 (c^{te} + \log \tau)$

$\tau^3 \ll \varepsilon_o \ll \tau \ll 1$ $\Delta H \sim H_E \varepsilon_o^2 \tau^3 (c^{te} + \log \frac{\tau}{\varepsilon_o})$

$\tau \ll \varepsilon_o \ll 1$ $\Delta H \sim H_E \varepsilon_o^3 \tau^2 \exp\left(-\frac{\varepsilon_o}{\tau}\right)$

Le calcul de Harris et al est certainement celui qui a été mené le plus rigoureusement, et auquel il faut apporter le plus de crédit. On doit cependant noter qu'il n'est valable , comme tous les autres qu'en champ magnétique nul. D'autre part, dans $GdAlO_3$, $\varepsilon_o = \frac{H_{sf}}{H_E} \simeq 0{,}5$, ce qui veut dire que même pour H = 0, les résultats du calcul s'appliqueraient mal car ils supposent toujours $\varepsilon_o \ll 1$.

La comparaison avec les résultats expérimentaux d'autres auteurs est par contre instructive, bien que peu de mesures de largeur de raie sur une large gamme de température aient été publiées. Ici aussi, les résultats obtenus présentent une certaine dispersion[68,74], et les gammes de températures explorées ne recouvrent pas entièrement la nôtre. Nous retiendrons particulièrement les mesures faites sur $CuF_2, 2H_2O$ et MnF_2. Dans $CuF_2, 2H_2O$, Najata et Date[70] ont trouvé une loi $\Delta H \sim T^3$ pour $0,1 < \frac{T}{T_N} < 0,4$, compatible dans ce domaine avec la théorie de Harris[67] ; sur la courbe qu'ils ont publiée donnant ΔH_{th} en fonction de T, on voit que leurs points expérimentaux s'éloignent sensiblement de cette loi en T^3 pour $0,4 < \frac{T}{T_N} < 0,5$. Il n'est pas possible d'établir la loi de variation de ΔH_{th} en fonction de T pour $\frac{T}{T_N} > 0,4$ car le nombre de mesures est insuffisant, mais on peut dire que ΔH_{th} augmente ici plus vite que T^3. Des mesures précises sur MnF_2 ont été publiées récemment[73,74], couvrant le domaine de température $0,08 < \frac{T}{T_N} < 0,6$, et la dépendance en température trouvée est $\Delta H_{th} \sim T^4$. Ici aussi, le résultat diffère sensiblement du nôtre, et les domaines de température ne se recouvrent qu'en partie, mais il faut remarquer sur les courbes publiées par Kotthaus et al. que leurs résultats pour $\frac{T}{T_N} > 0,5$ montrent que ΔH_{th} s'écarte de cette loi en T^4 et varie plus rapidement en fonction de la température. On peut noter aussi que, pour des $\frac{T}{T_N}$ identiques les valeurs de ΔH_{th} mesurées dans MnF_2 sont très proches de celles que nous avons mesurées dans $GdAlO_3$

En conclusion, nous pouvons dire qu'aucun calcul théorique n'explique pour l'instant nos résultats expérimentaux sur les variations de la largeur de raie de résonance antiferromagnétique en fonction de la température, sans doute parce que les domaines de validité des calculs publiés ne correspondent pas à nos conditions de mesures ; en particulier, il n'est pas interdit de penser que la présence d'un champ magnétique non négligeable devant le champ de spin-flop puisse modifier les conditions de relaxation des ondes de spin. Cependant, nos résultats paraissent

compatibles avec ceux d'autres auteurs qui ont fait les mêmes mesures sur des cristaux différents ; une comparaison plus approfondie nécessiterait des mesures à plus basse température en ce qui concerne $GdAlO_3$, et à plus haute température pour les autres composés étudiés. Il apparaît donc nécessaire à la fois d'effectuer de nouveaux calculs théoriques et d'obtenir de nouveaux résultats expérimentaux dans ces composés ainsi que dans d'autres cristaux antiferromagnétiques du même type.

VI-2 . *Interprétation des résultats expérimentaux pour* $H > H_{sf}$.

Si les résultats expérimentaux ont pu être interprétés d'une manière simple dans le cas de la phase antiferromagnétique, en supposant que l'on connaissait avec une bonne approximation la valeur du champ magnétique dans l'échantillon, il n'en est pas tout à fait de même dans la phase floppée ou dans la phase paramagnétique. Les erreurs que l'on peut commettre sur l'évaluation du champ magnétique dans le cristal ont essentiellement deux origines :

1°) La position de l'échantillon dans la bobine supraconductrice peut varier légèrement d'une expérience à l'autre, suivant le dispositif employé (cavités à 1, à 2 ou à 9 GHz). Nous nous sommes efforcés de positionner le cristal au mieux, mais il reste toujours une certaine incertitude.

2°) Dans la phase floppée, le cristal possède une aimantation qui est fonction de la température, et est d'autant plus grande que l'on se trouve plus près de la transition d'échange ; dans la phase paramagnétique, l'aimantation se trouve être saturée par le champ magnétique extérieur. Il en résulte dans ces deux phases l'existence d'un champ démagnétisant important qui, dans des échantillons n'ayant pas la forme de plaquettes minces, se trouve être fortement inhomogène. Nous verrons que ces inhomogénéités du champ démagnétisant peuvent influencer fortement les résultats expérimentaux.

Il est par conséquent difficile de savoir dans certains cas, pour $H \sim H_c$, si le cristal se trouve dans la phase paramagnétique ou non : il faut en général trouver un critère qui détermine sur les courbes elles-mêmes la position de la transition. De plus, cette transition n'a pas toujours lieu uniformément dans tout le cristal.

La première chose à remarquer, c'est l'apparence tout à fait différente des résultats dans les deux gammes de fréquence (1 et 9 GHz, figures 20 et 21), tant en ce qui concerne l'ordre de grandeur du phénomène observé que sa localisation en champ magnétique. Ceci aurait justifié des mesures à des fréquences intermédiaires pour déterminer comment ces deux types de courbes se raccordaient, c'est-à-dire tenter de répondre à la question : est-ce le même phénomène qui se trouve à l'origine de l'atténuation ultrasonore observée à 9 GHz, et entre 0,5 et 1,8 GHz ? Le matériel dont nous disposions ne permettant pas ces mesures, nous avons interprété les mesures faites à 9 GHz, puis à partir des résultats obtenus, nous avons pu expliquer les courbes d'atténuation à plus basse fréquence.

a - 9 GHz

Les courbes sont caractérisées par l'ordre de grandeur de l'atténuation maximum (~ 300 dB/cm à 1,7 K) et par leur grande largeur en champ magnétique. L'atténuation observée a lieu en majeure partie relativement loin des points de transitions de phase, ce qui exclut le couplage des ultrasons avec des fluctuations critiques par exemple. Les mécanismes qui peuvent rendre compte des résultats sont a priori :

- le couplage des ultrasons avec les parois des domaines magnétiques.
- le couplage résonnant phonons-magnons de basse fréquence.

L'atténuation ultrasonore due aux mouvements des parois de domaines dans les antiferromagnétiques a été envisagée et discutée à plusieurs reprises.

Il faut considérer deux sortes de domaines magnétiques. Les premiers pour $H_{sf} < H < H_e$ peuvent provenir de l'existence dans le plan (010) de plusieurs directions équivalentes pour l'aimantation. En fait, $GdAlO_3$ possède une structure orthorhombique, et comme on le vérifiera par la suite, le champ d'anisotropie H_{Al} dans le plan (010) n'est pas nul. En ce cas, il ne peut y avoir de domaines excepté des domaines à 180° ; des arguments simples de symétrie montrent que le couplage éventuel des ultrasons avec ces domaines ne peut expliquer les résultats obtenus dans les différents cas. Les autres domaines magnétiques à considérer sont ceux qui existent au voisinage de la transition spin-flop et dont nous avons parlé au chapitre II. Sur un certain intervalle de champ magnétique, le cristal est constitué de régions alternativement antiferromagnétique et floppée. Les domaines existent, comme nous l'avons vu, pour des valeurs du champ magnétique appliqué comprises entre H_{sf} et $H_{sf}\ (1 + N_Z\ \chi_m)$ [48]. Dans le cas de $GdAlO_3$, ces expressions montrent que pour la valeur maximum de N_Z ($N_Z = 4\pi$), on ne peut observer de domaines au voisinage de la transition spin-flop que sur un intervalle de champ magnétique de 3000 G environ à 1,7 K.

Il apparaît alors que l'atténuation ultrasonore observée dans nos expériences ne semble pas pouvoir être attribuée aux mouvements des parois de domaines.

Examinons maintenant l'hypothèse du couplage résonnant des ultrasons avec les ondes de spin. Les règles de sélection nous disent par exemple que pour $\vec{k} \,//\, \vec{u} \,//\, [010]$ (figures 20, 21), les ultrasons ne peuvent se coupler de manière résonnante qu'avec le mode d'onde de spin α. Pour qu'il puisse y avoir couplage résonnant, il faut que la fréquence de ce mode à $k = 0$ soit non nulle, donc que le champ d'anisotropie dans le plan (H_{Al}) soit différent de zéro. Les mesures de susceptibilité faites par différents auteurs [57,58] ne permettent pas de se faire une idée très claire a ce sujet. Pour savoir si les ondes de spin jouent vraiment un rôle, l'idée qui vient à l'esprit consiste à vérifier les règles de sélection écrites plus haut : par exemple, pour $\vec{k} \,//\, [001]$, $\vec{u} \,//\, [100]$ et

$\vec{k} \parallel [001]$, $\vec{u} \parallel [010]$, les résultats devraient être très différents si l'atténuation résulte du couplage résonnant. La difficulté à réaliser des collages qui laissent passer les ondes ultrasonores de polarisation transversale nous a empêché d'effectuer cette expérience qui aurait rapidement éclairci la question. Nous pouvons cependant remarquer que tous les résultats expérimentaux donnés au chapitre précédent pour différentes directions de propagation et de polarisation des ultrasons sont compatibles avec l'existence d'un couplage résonnant avec le mode d'onde de spin α (voir règles de sélection). Par ailleurs, sur des mesures similaires faites avec un champ magnétique perpendiculaire à l'axe de facile aimantation[3,4], nous avons pu vérifier les règles de sélection pour le couplage résonnant avec un mode d'onde de spin tout à fait analogue au mode α de la phase floppée, et montrer que le couplage se faisait par le mécanisme de Van Vleck ; d'autre part, l'atténuation maximum était du même ordre de grandeur que celle que nous obtenons dans la phase floppée.

Le plus simple alors nous a semblé d'essayer de calculer une forme de "raie" de résonance, en prenant deux paramètres ajustables qui peuvent varier avec la température : la fréquence des ondes de spin à $k = 0$ en champ magnétique faible, et le temps de vie τ de ces ondes de spin. Pour que l'atténuation se produise sur un grand intervalle de champ magnétique, il faut que les fréquences des ultrasons et des ondes de spin soient voisines sur un grand intervalle de champ. La partie presque horizontale de la courbe $\omega_1(k = 0)$ en fonction de H (fig.5) doit donc correspondre à une fréquence proche de 9 GHz. D'autre part, d'après la forme du couplage phonons-magnons en fonction du champ magnétique (fig.13), le couplage augmente avec le champ magnétique (sauf près de H_e) et cette augmentation compense en partie la diminution due au fait que la condition de résonance (fréquences égales) est de moins en moins satisfaite. Il est possible dans ces conditions d'obtenir une atténuation qui soit visible dans toute la phase floppée.

Nous avons donc calculé l'atténuation dans la phase floppée en fonction du champ magnétique à différentes températures, en ajustant le

temps de relaxation et la fréquence des ondes de spin pour trouver des formes d'atténuation qui soient le plus semblables possible aux courbes obtenues expérimentalement. Les courbes expérimentales et les courbes théoriques sont représentées sur la figure 25. Les paramètres qui déterminent ces courbes sont les suivants :

T(°K)	1,57	1,65	1,87
τ(s)	$1,9 10^{-10}$	$1,7 10^{-10}$	$1,3 10^{-10}$
f_o(GHz)	11,55	11,1	10,35
H_{A1} (Gauss)	460	445	390

Les valeurs des constantes de couplage magnétoélastiques déterminées antérieurement ($G_{11} \simeq 0,7$ cm^{-1} $G_{44} \simeq 0,3$ cm^{-1}) conduisent à une valeur d'atténuation en bon accord avec les résultats présentés ici. La gamme de températures qui a pu être explorée est trop petite pour pouvoir établir un loi de variation du temps de relaxation des ondes de spin ou de leur fréquence en champ nul en fonction de T.

L'accord entre les courbes expérimentales et théoriques est bon vers les hauts champs. Vers les bas champs, il est d'autant moins bon que la température est plus haute (c'est-à-dire que le temps de vie τ est plus court), pour la raison suivante : la formule qui permet de calculer l'atténuation s'applique pour toute valeur du champ magnétique c'est-à-dire depuis H =0 jusqu'à H = H_e. Cela veut dire que pour H < H_{sf}, l'atténuation calculée est non nulle. Ceci est dû au fait que ce n'est pas le mode d'onde de spin considéré ici qui provoque une instabilité magnétique à la transition spin-flop, donc pour 0 < H < H_e, on peut toujours écrire une formule qui donne la fréquence de ce mode ; en fait, cette formule n'a un sens physique que si H > H_{sf}. Expérimentalement, nous voyons que l'atténuation existe seulement pour H > H_{sf}. L'accord

entre les courbes sera donc bon si l'atténuation calculée pour $H < H_{sf}$ est très inférieure à l'atténuation maximum. Ceci est le cas à 1,57°K et à 1,65°K, mais déjà à 1,87°K il devient difficile de trouver une courbe théorique convenable et nous n'avons pas représenté de courbe calculée pour 2,15°K. Nous reviendrons un peu plus en détail par la suite sur les variations d'atténuation observées au voisinage de la transition spin-flop.

Sur la courbe expérimentale à 1,87°K (fig. 20 ou 25), nous remarquons une atténuation plus forte que sur les autres courbes, lorsque le champ magnétique est un peu supérieur au champ de spin-flop. Nous attribuons cette atténuation supplémentaire au couplage des ultrasons avec le mode d'onde de spin ω_2 (mode de haute fréquence). Ce couplage est en principe interdit par les règles de sélection écrites ci-dessus ; il peut cependant exister dès que le cristal présente une légère désorientation par rapport au champ magnétique. Des expériences de résonance antiferromagnétique électronique effectuées au voisinage de la transition spin-flop[40] montrent que le mode β peut être observé à la fréquence de 9 GHz dans un champ magnétique légèrement supérieur au champ de spin-flop. Notre échantillon n'était donc certainement pas aussi bien orienté dans cette expérience que dans celles faites aux autres températures.

Le temps de relaxation des ondes de spin que nous avons déterminé en le considérant comme un paramètre ajustable dans le calcul des courbes théoriques, est un peu inférieur, mais cependant du même ordre de grandeur que celui déterminé en résonance antiferromagnétique : $\tau \simeq 1{,}5\ 10^{-10}$ s à 1,7°K dans la phase floppée et $\tau \simeq 3.10^{-10}$ s dans la phase antiferromagnétique à la même température.

Enfin, la comparaison entre nos résultats expérimentaux et les règles de sélection pour le couplage résonnant écrites en considérant que les spins se trouvent dans le plan (100) ou (001) confirme que c'est le plan (100) qui contient les spins dans la phase floppée.

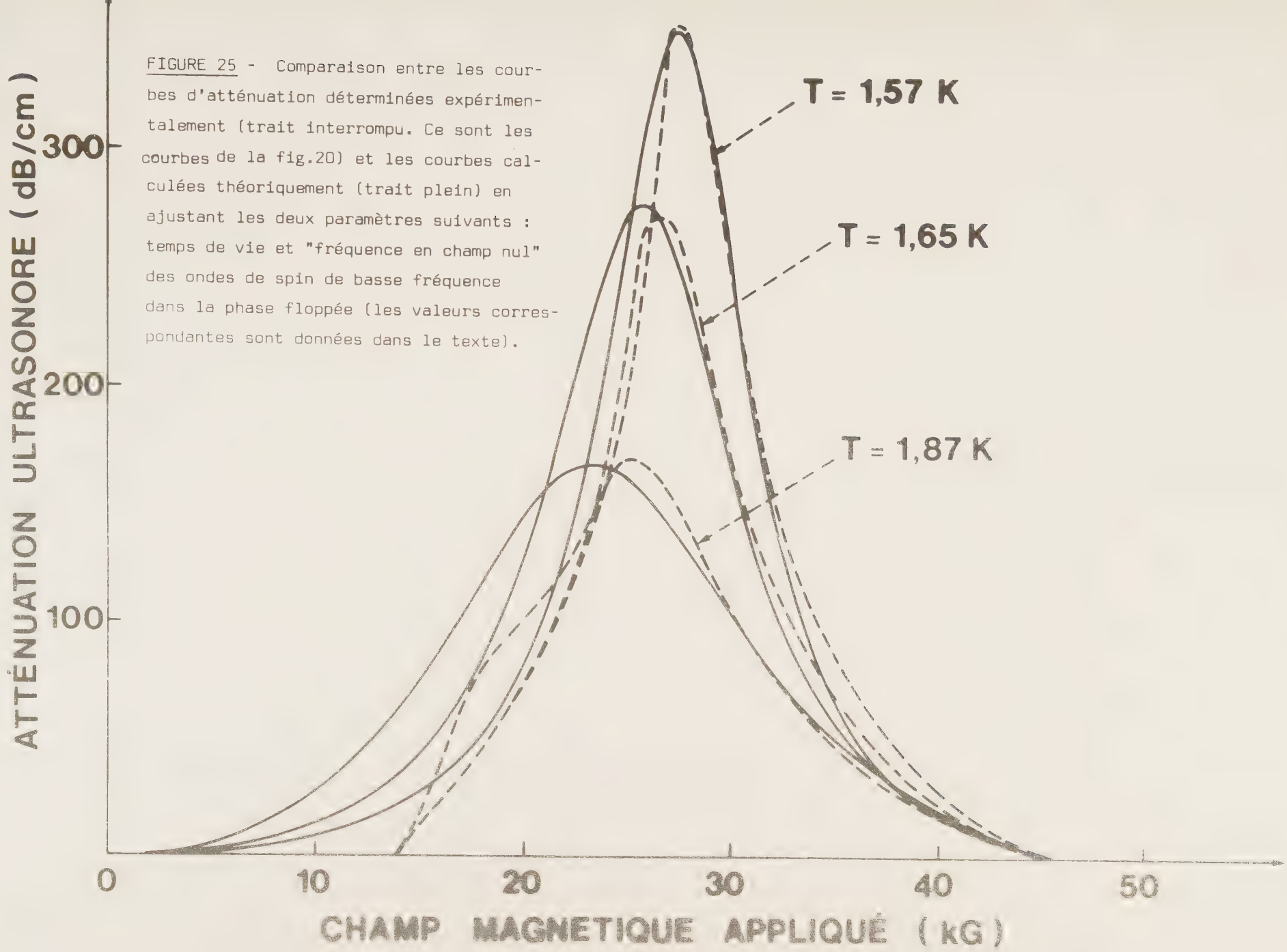


FIGURE 25 - Comparaison entre les courbes d'atténuation déterminées expérimentalement (trait interrompu. Ce sont les courbes de la fig.20) et les courbes calculées théoriquement (trait plein) en ajustant les deux paramètres suivants : temps de vie et "fréquence en champ nul" des ondes de spin de basse fréquence dans la phase floppée (les valeurs correspondantes sont données dans le texte).

b - 0,5 à 1,8 GHz

Ayant déterminé par les mesures faites à 9 GHz la fréquence f_o du mode d'onde de spin α à $k = 0$, extrapolée en champ nul, nous pouvons, à l'aide de la théorie des ondes de spin tracer la courbe $f_1(k = 0)$ en fonction du champ magnétique, en mettant des valeurs numériques pour f_1 : $f_1(k = 0) = f_o \sin\theta$

soit : $f_1(GHz) \simeq 11,5 \sqrt{1 - \frac{H^2}{H_e^2}}$ à 1,6°K

Sur la figure 26, nous avons porté f_1 en fonction de H, et nous avons indiqué les différentes fréquences ultrasonores utilisées. On voit donc que le couplage résonnant entre 0,5 et 1,8 GHz doit se produire près de la transition d'échange ; nos résultats dans cette gamme de fréquence sont donc compatibles a priori avec l'interprétation en termes de couplage résonnant. Nous avons cependant vérifié que le pic d'atténuation observé était situé entièrement dans la phase floppée : cette vérification a en fait été effectuée par une expérience en champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, c'est-à-dire $\vec{H} // [100]$. La transition vers la phase paramagnétique présente dans ces conditions les mêmes caractéristiques que la transition de la phase floppée vers la phase paramagnétique, et les résultats obtenus entre 0,5 et 1,8 GHz sont pratiquement identiques, tandis qu'à 9 GHz on obtient une raie d'atténuation qui permet de déterminer avec précision le champ de transition[3] (du moins si le champ est homogène dans le cristal). L'expérience consistait à enregistrer en même temps, sur le même échantillon, l'atténuation à 9 GHz et à 1,8 GHz dans le cas $\vec{H} // \vec{k} // \vec{u} // [100]$. Le pic d'atténuation à 9 GHz se situe entièrement dans la phase oblique et nous avons constaté que l'atténuation à 1,8 GHz se produisait pour les mêmes valeurs de champ magnétique qu'à 9 GHz.

En ce qui concerne la dépendance en fréquence de l'atténuation maximum, nous avons vu que cette atténuation était proportionnelle à ω^2 si la résonance se produit près de la transition d'échange, c'est-à-dire si la fréquence ultrasonore est très inférieure à la fréquence des ondes de spin en champ nul (en pratique si $\frac{\omega_{us}}{\omega_{spin}\,(k=o,H=o)} < 0{,}2$). Sur la figure 2', nous avons représenté les variations de α_{max} en fonction du carré de la fréquence ultrasonore, pour des mesures effectuées à 1,7°K. Nous voyons que les variations de l'atténuation maximum sont compatibles dans cette gamme de fréquence avec une loi en ω^2.

Si maintenant on calcule l'atténuation résultant du couplage résonnant avec le mode d'onde de spin α pour une fréquence de l'ordre [illegible] en prenant comme temps de relaxation des ondes de spin une valeur déterminée par les mesures à 9 GHz, on trouve bien une raie de résonance pour des valeurs de champ magnétique un peu inférieures au champ de transition vers la phase paramagnétique, mais :

- l'atténuation calculée en prenant comme constantes de couplage celles déterminées précédemment dans la phase antiferromagnétique est environ trois fois plus grande que l'atténuation observée.
- le calcul donne une raie de forme dissymétrique avec un flanc raide vers les hauts champs magnétiques, alors que l'expérience donne une raie dissymétrique mais avec un flanc raide vers les [illegible]

Nous pouvons expliquer ces différences de forme et d'ordre de grandeur par l'inhomogénéité du champ démagnétisant. En effet, une chose essentielle différencie les expériences à 1 et 9 GHz : à 9 GHz, [illegible] est grande, donc pour pouvoir la mesurer, il faut opérer [illegible] nces, dans lesquelles le champ démagnétisant est important mais homogène. Vers 1 Ghz, au contraire, l'atténuation est faible et sa mesure nécessite de grands parcours dans le cristal, [illegible] ions relativement massifs, dans lesquels le champ démagnétisant est inhomogène. Nous avons essayé de voir si ,

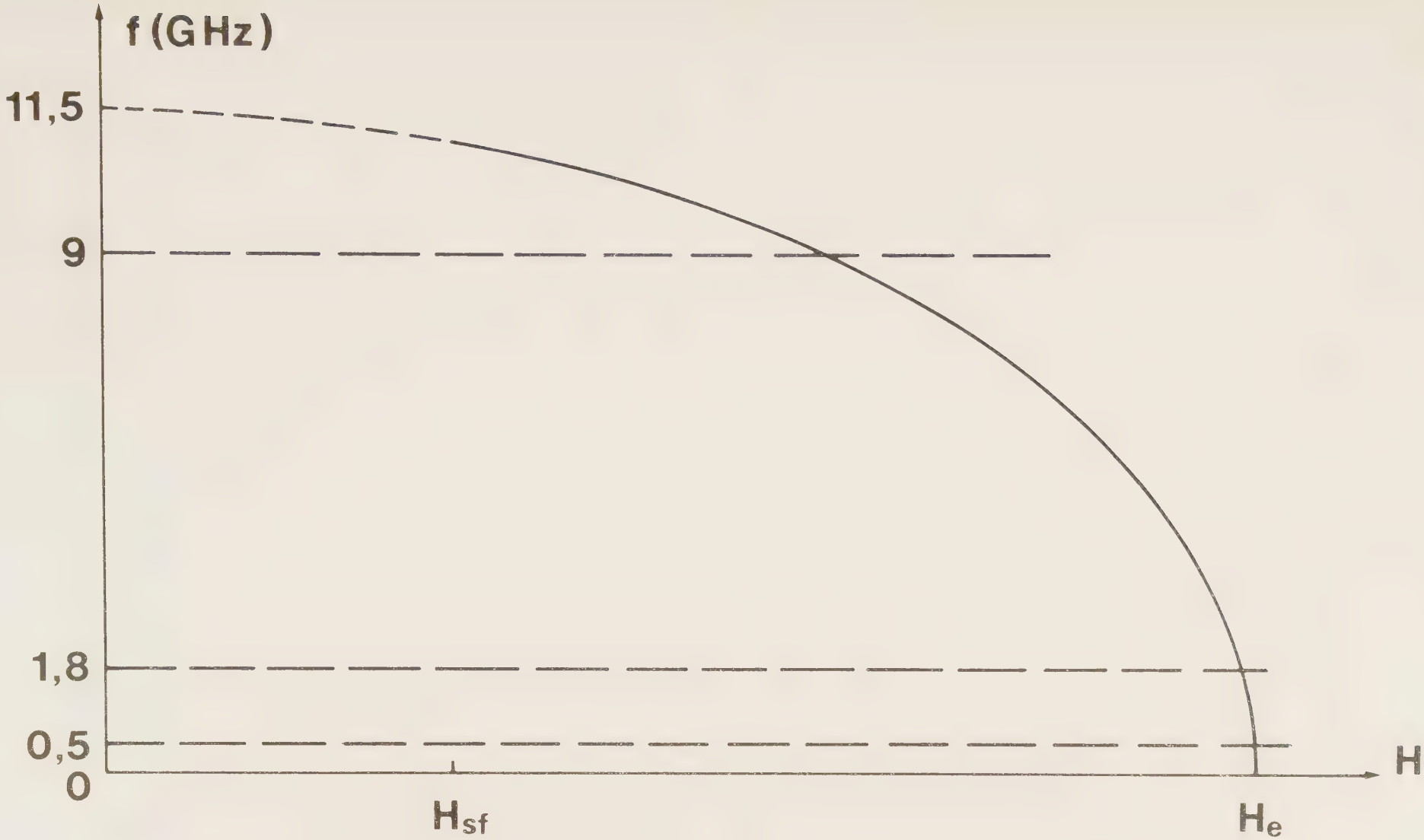
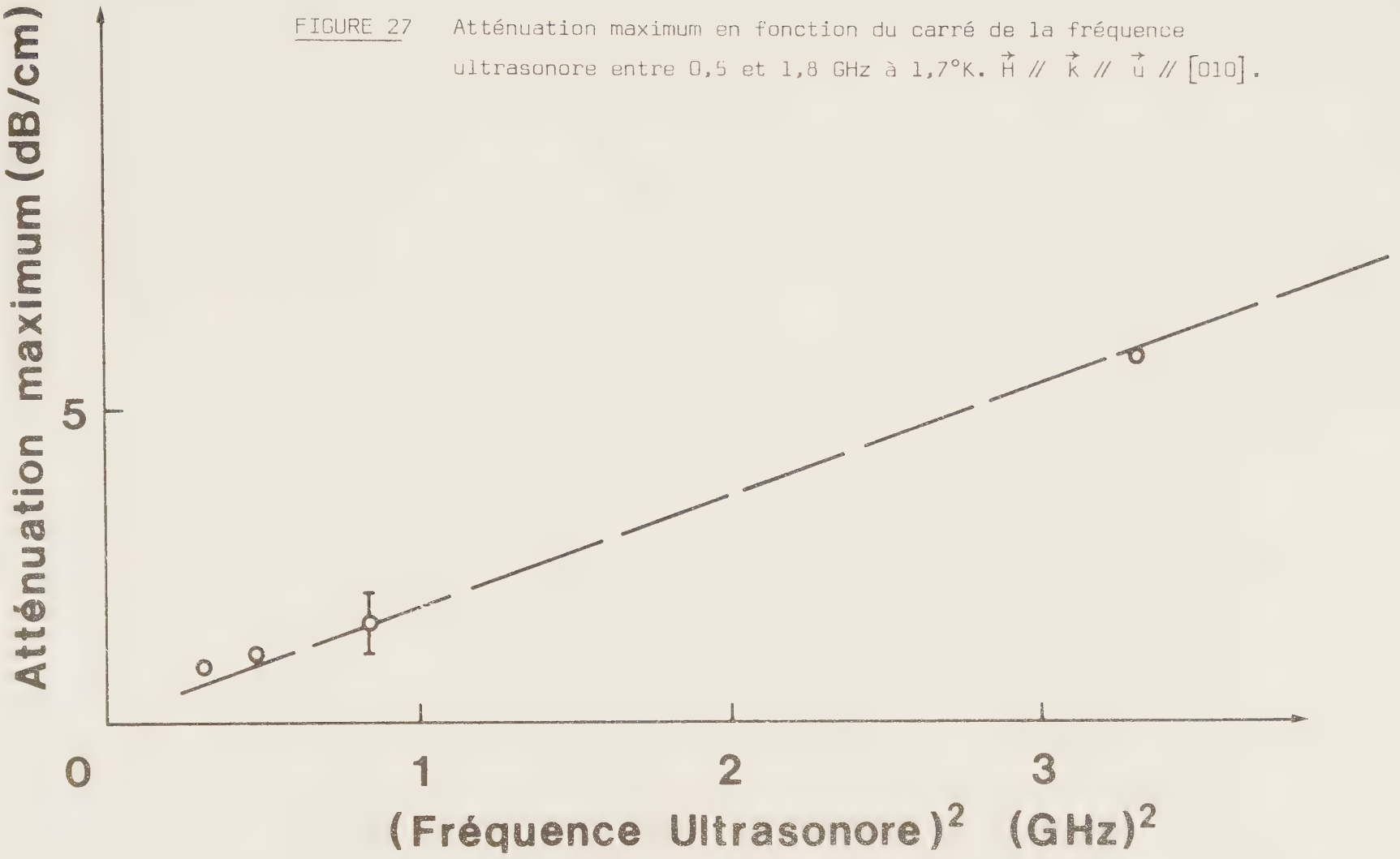


FIGURE 26 Fréquence des ondes de spin α à k = 0 en fonction du champ magnétique dans la phase floppée de $GdAlO_3$ à 1,6°K, d'après la théorie des ondes de spin et nos résultats expérimentaux. Les traits interrompus horizontaux indiquent les fréquences ultrasonores utilisées.

FIGURE 27 Atténuation maximum en fonction du carré de la fréquence ultrasonore entre 0,5 et 1,8 GHz à 1,7°K. $\vec{H} // \vec{k} // \vec{u} // [010]$.



en première approximation, ces inhomogénéités du champ démagnétisant pouvaient faire passer d'une forme de courbe à l'autre.

Les cristaux utilisés avaient la forme de cubes d'environ 3,5 mm de côté, que l'on peut assimiler à des cylindres de diamètre et hauteur égaux. Nous prendrons comme champ démagnétisant sa valeur sur l'axe du cylindre. Si ℓ est la distance par rapport au centre et L la hauteur (ou le diamètre dans notre cas) et si $x = \frac{2\ell}{L}$, le champ démagnétisant est donné par :

$$H_D(x) = 2\pi M \left[2 - \frac{1-x}{\left[1+(1-x)^2\right]^{1/2}} - \frac{1+x}{\left[1+(1+x)^2\right]^{1/2}} \right] = 2\pi M D(x)$$

où M est l'aimantation du cristal, supposée uniforme. La figure 28 montre la variation de $\frac{H_D}{2\pi M}$ en fonction de x. Le champ magnétique qui agit sur les spins est $H(x) = H_o - 2\pi M D(x)$

En toute rigueur, l'aimantation n'est pas constante dans tout l'échantillon, puisqu'elle dépend du champ magnétique qui, lui, est inhomogène. Dans la phase floppée, par exemple, et en négligeant H_{A1} et H_{A2} :

$$M(x) = M_o \cos\theta = M_o \frac{H(x)}{2H_E - H_A}$$

Pour simplifier les calculs, nous utiliserons la formule du champ démagnétisant écrite ci-dessus en prenant pour M une valeur moyenne correspondant à un champ démagnétisant moyen $\bar{H}_D$:

$$\bar{H}_D \simeq 0{,}8 \times 2\pi M \quad \text{soit} \quad \bar{H}_D = 5M$$

$$M = M_o \frac{H - \bar{H}_D}{2H_E - H_A} = M_o \left[\frac{H_o}{2H_E - H_A} - \frac{5M}{2H_E - H_A} \right]$$

$$\text{Soit } M = M_o \frac{H_o}{2H_E - H_A + 5M_o}$$

$$\text{donc} \quad H(x) = H_o \left[1 - \frac{2\pi M_o}{2H_E - H_A + 5M_o} D(x) \right]$$

L'atténuation ultrasonore au point d'abcisse x sur le trajet correspondant à dx est :

$$d\alpha = A(x)\, dx \simeq \frac{\sin\theta \cos^2\theta \ \tau}{1 + \tau^2(\omega_{us} - \omega_o \sin\theta)^2} dx$$

La valeur de l'angle θ dépend du champ qui agit sur les spins, donc de x. θ(x) est donné par :

$$\cos|\theta(x)| = \frac{H(x)}{2H_E - H_A} = \frac{H_o \left[1 - \frac{2\pi M_o}{2H_E - H_A + 5M_o} D(x) \right]}{2H_E - H_A}$$

Cette formule est valable en tout point où elle donne une valeur de cosθ inférieure à 1 ; sinon, il faut prendre cosθ = 1 et l'atténuation correspondante est nulle.

L'atténuation par unité de longueur s'écrit alors :

$$\alpha_{dB/cm} \simeq \frac{1}{L} \int_{-1}^{+1} \frac{\sqrt{1 - \left(\frac{H(x)}{2H_E - H_A} \right)^2} \left(\frac{H(x)}{2H_E - H_A} \right)^2 \tau}{1 + \tau^2 \left[\omega_{us} - \omega_o \sqrt{1 - \left(\frac{H(x)}{2H_E - H_A} \right)^2} \right]^2} dx$$

Nous avons calculé la forme de cette atténuation : elle est représentée sur la figure 29 en même temps que celle qui existerait si le champ était uniforme et égal à sa valeur pour x = 1. Plusieurs remarques peuvent être faites au sujet de ces courbes :

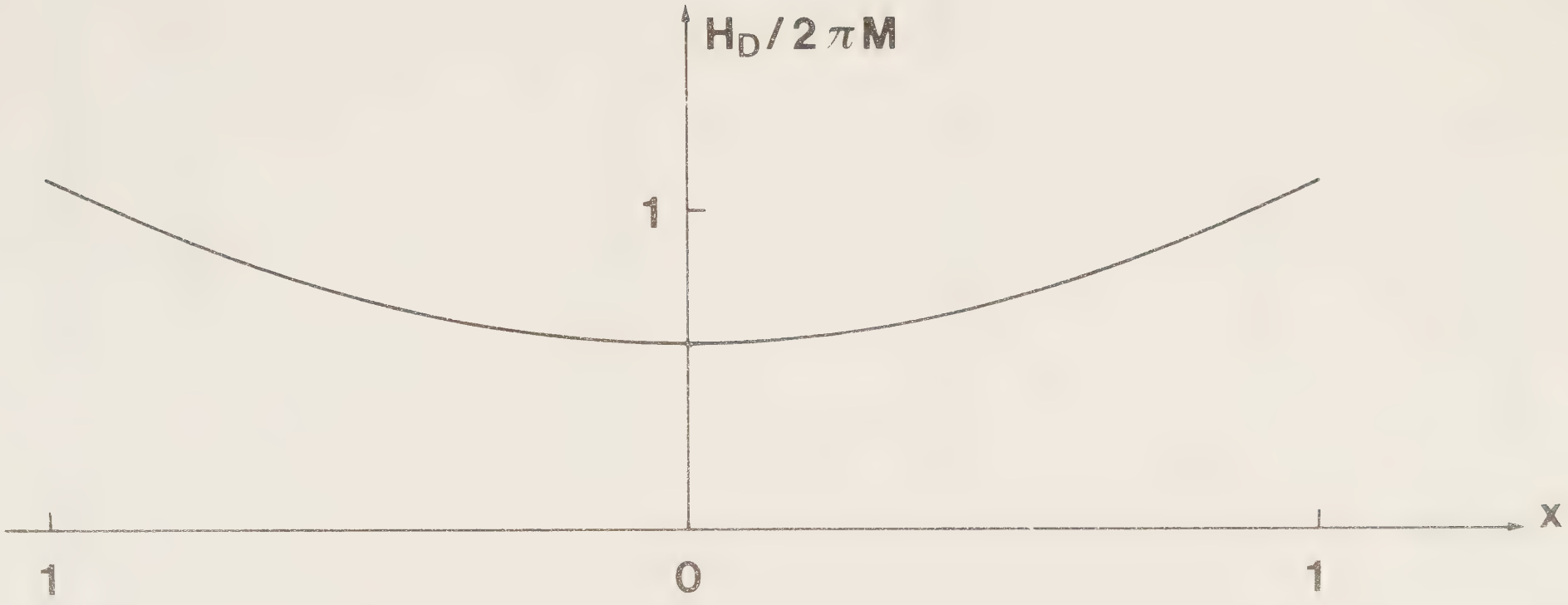
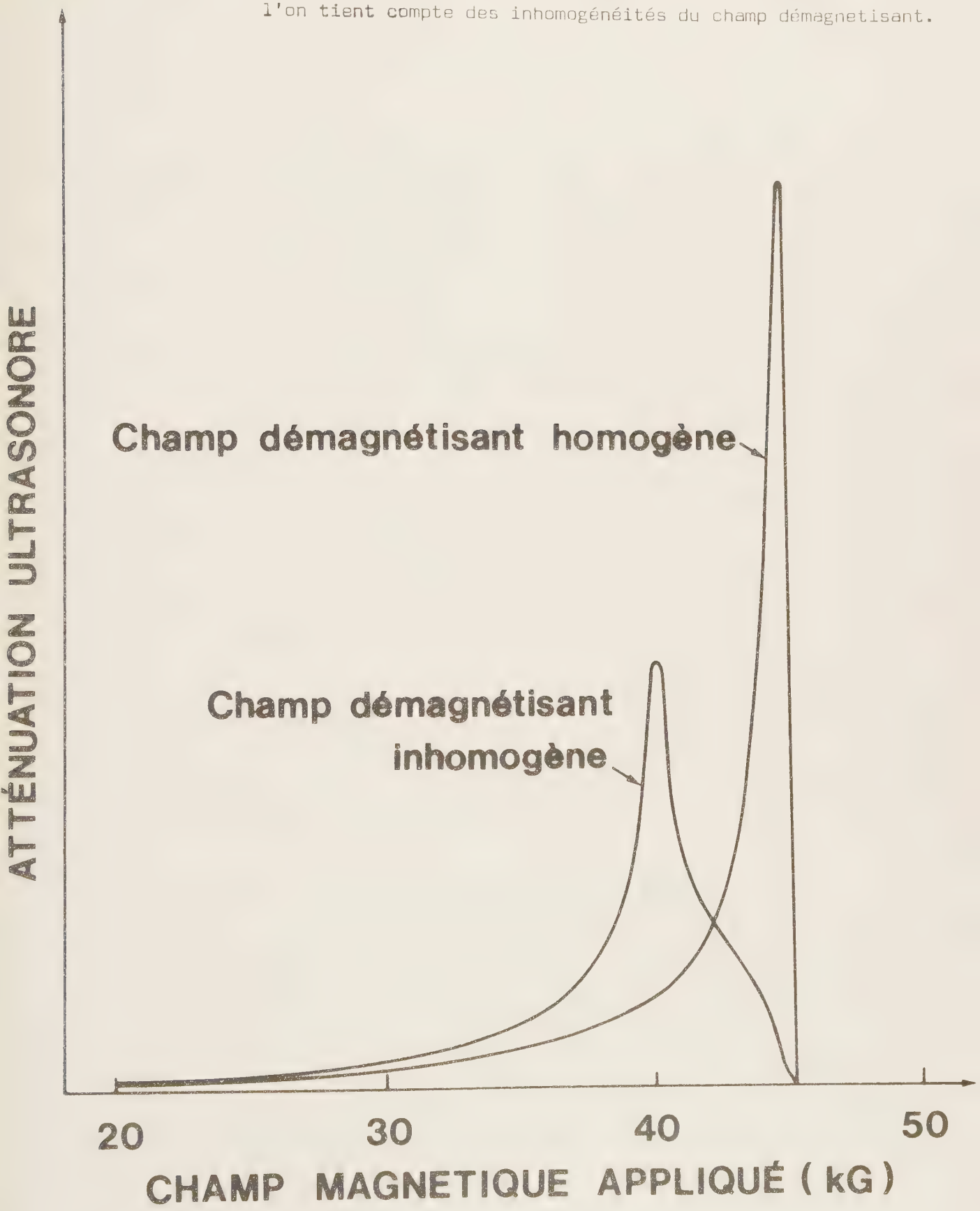


FIGURE 28 Champ démagnétisant sur l'axe d'un cylindre dont le diamètre et la hauteur sont égaux, et dont l'aimantation est uniforme. Pour la définition [illegible] le texte.

FIGURE 29 Formes de raie d'atténuation résonnante près de la transition d'échange lorsque le champ magnétique est homogène et lorsque l'on tient compte des inhomogénéités du champ démagnetisant.



1 - Les deux maxima d'attenuation ne sont pas placés à la même valeur du champ magnétique. En fait, la valeur du champ supposé homogène a été fixée arbitrairement (nous aurions aussi bien pu prendre le champ au centre de l'échantillon), donc la position du maximum correspondant n'a pas beaucoup de signification.

2 - La forme de la raie évolue bien dans le même sens que ce que nous donnent les résultats expérimentaux : flanc raide vers les hautes champs si le champ est uniforme, vers les bas champs dans l'autre cas.

3 - L'inhomogénéité du champ démagnétisant a pour effet de diminuer la valeur de l'atténuation maximum d'un facteur 2 ou 3, ce qui est tout a fait compatible avec la comparaison des résultats à 1,8 et 9,3 GHz. La diminution de α_{max} dépend de la forme du cristal utilisé. Il ne faut donc pas chercher à comparer d'une manière très précise les résultats qui proviennent de deux échantillons qui n'ont pas tout à fait la même forme.

Tout ceci ne constitue certainement pas une démonstration rigoureuse, car nous avons fait des approximations sur la forme du cristal et sur la répartition du champ démagnétisant. Les résultats sont cependant compatibles avec les courbes expérimentales, tant en ce qui concerne la forme de la raie que son amplitude. En ce sens, cette explication peut être considérée comme positive.

Remarques au sujet des transitions de phase examinées.

A la transition spin-flop, nous pouvons remarquer que nos résultats paraissent tout à fait différents de ceux obtenus par d'autres auteurs dans d'autres composés antiferromagnétiques (voir par exemple ref. citées dans (16)) ; il faut souligner à ce sujet que toutes ces expériences publiées ont été menées à des fréquences plus basses (< 1 GHz), c'est-à-dire dans des conditions dans lesquelles il n'est pas possible de faire la distinction sur les courbes d'atténuation entre la résonance

antiferromagnétique acoustique et la transition spin-flop elle-même. On doit noter aussi qu'aucune théorie relative à l'atténuation ultrasonore au voisinage de la transition spin-flop [75-78] n'a réussi jusqu'à présent à donner une interprétation cohérente de tous les résultats expérimentaux, et on peut trouver plusieurs raisons à cela : manque d'informations précises sur les conditions expérimentales ou sur la dynamique de la transition (les modèles théoriques qui ont pu être développés n'ont jamais pu donner lieu à une vérification expérimentale)...

En ce qui concerne nos résultats, nous n'obtenons aucune propriété "anormale" de l'atténuation, c'est-à-dire pas de discontinuité à la transition. Dans la gamme 0,5 à 1,8 GHz, la transition n'a pas d'influence sur le signal ultrasonore. A 9 GHz l'atténuation apparaît progressivement mais on peut voir sur les courbes que l'on a une discontinuité de la fonction $\frac{d\alpha}{dH}$, qui traduit quand même l'existence d'une transition nette. Si cette transition se produisait d'un seul coup dans tout le cristal, comme le laissent croire les théories simples décrites plus haut, on devrait voir l'atténuation passer brusquement à la valeur théorique correspondante. L'existence de domaines alternativement antiferromagnétiques et floppés est parfaitement compatible avec nos résultats : plus le champ magnétique augmente, plus les domaines floppés se développent, donc plus l'atténuation est grande. La contribution des domaines ne vient pas de l'interaction des ultrasons avec les mouvements des parois, mais du fait que ne contribue à l'atténuation que le volume du cristal qui se trouve dans la phase floppée. Sans aller jusqu'à dire que nos expériences confirment (s'il en est encore besoin) l'existence de domaines au voisinage de la transition spin-flop, on peut donc remarquer qu'il est possible de leur donner une interprétation dans ce sens.

A la transition vers la phase paramagnétique, nous n'avons vu aucune variation de l'atténuation ultrasonore, dans les deux gammes

de fréquences utilisées ; les variations auxquelles on peut s'attendre proviendraient des processus :

1 phonon + 1 magnon → 1 magnon

1 phonon → 2 magnons

de même près de la transition spin-flop, ces deux processus doivent intervenir ; c'est sans doute à cause de la faiblesse des constantes de couplage magnétoélastique qu'ils ne sont pas visibles.

CONCLUSION

Au terme de cette étude sur les interactions phonons-magnons, il nous paraît utile de résumer les principales idées développées et les résultats obtenus, ainsi que de préciser les développements auxquels ils pourraient par la suite donner lieu.

Après avoir rappelé quelques généralités sur les interactions magnétoélastiques et les diverses méthodes d'étude des interactions phonons-magnons dans les cristaux magnétiques concentrés, nous nous sommes intéressés plus particulièrement au problème de l'absorption des ondes ultrasonores dans le cas simple d'un antiferromagnétique uniaxial à deux sous-réseaux identiques, en présence d'un champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation. La connaissance du spectre des ondes de spin dans les différentes phases nous a permis de déterminer de manière systèmatique les diverses manières d'obtenir un couplage entre une onde ultrasonore et une onde de spin, en considérant les transitions qui mettent en jeu deux ou trois ondes (1 phonon et 1 magnon, ou 1 phonon et 2 magnons) ; pour chaque type de transition, nous avons pu indiquer le ou les mécanismes de couplage (mécanisme de Van Vleck, ou modulation de l'intégrale d'échange) qui pouvait en être responsable. En tenant compte des ordres de grandeurs des fréquences usuelles des ondes ultrasonores et des ondes de spin, nous avons pu donner des précisions sur la possibilité et les conditions d'observation des différentes transitions.

Nous avons ensuite appliqué ces considérations au cas de l'aluminate de gadolinium, et avons calculé l'atténuation ultrasonore résultant de plusieurs transitions dans la phase antiferromagnétique et dans la phase floppée.

Les résultats expérimentaux d'absorption ultrasonore à 9 GHz dans la phase antiferromagnétique de $GdAlO_3$ ont montré l'existence d'une transition mettant en jeu trois ondes (1 phonon + 1 magnon → 1 magnon) pour H ≃ 1,5 kG et d'un couplage résonnant direct (1 phonon → 1 magnon) pour H ≃ 9 kG à basse température. La résonance antiferromagnétique acoustique a été étudiée en détail : nous avons tout d'abord vérifié les règles de sélection pour ce couplage ; la mesure de l'atténuation maximum et de la largeur de raie a permis l'évaluation des constantes de couplage magnétoélastique G_{11} et G_{44} ($G_{11} \simeq 0,7\ cm^{-1}$ et $G_{44} \simeq 0,3\ cm^{-1}$) ; l'étude de la raie de résonance en fonction de la température a montré que la contribution thermique à la largeur de raie suivait une loi en T^5 pour $0,3 < \frac{T}{T_N} < 0,9$; ce résultat est difficile à comparer aux calculs théoriques publiés à ce jour ; la comparaison avec certains résultats expérimentaux montre au contraire une certaine convergence. En résumé, cette étude en fonction de la température doit être considérée comme un élément d'information supplémentaire pour un problème qui n'est pas entièrement résolu à l'heure actuelle. Nous avons par ailleurs souligné l'intérêt d'utiliser des fréquences ultrasonores élevées pour ce type d'étude.

L'atténuation ultrasonore mesurée dans la phase floppée a pu être attribuée au couplage résonnant entre les ultrasons et le mode d'onde de spin de basse fréquence, par le mécanisme de Van Vleck. Nous avons pour cela vérifié les règles de sélection , et calculé l'atténuation en fonction du champ magnétique à différentes fréquences (0,5 - 1,8 GHz, 9 GHz). Les résultats obtenus à 9 GHz nous ont permis d'évaluer le champ d'anisotropie dans le plan perpendiculaire à l'axe de facile aimantation ($H_{A1} \simeq 450$ G à 1,6°K), et l'ordre de grandeur du temps de relaxation des ondes de spin ($\tau \simeq 1,5\ 10^{-10}$s à 1,7°K); l'atténuation observée est en bon accord avec les valeurs des constantes de couplage magnétoélastique

déterminées précédemment. Pour interpréter nos résultats à plus basse fréquence, nous avons dû tenir compte des inhomogénéités du champ démagnétisant dans l'échantillon ; par ailleurs, l'atténuation suit bien une loi en ω^2, conformément à la théorie. L'étude des règles de sélection a d'autre part confirmé que les spins se trouvent dans le plan (100) dans la phase floppée.

En ce qui concerne le transition spin-flop, elle apparaît sur nos résultats de mesures comme une transition bien nette, mais l'atténuation n'y subit aucune discontinuité. On peut dire que ceci est tout à fait compatible avec l'existence d'un état intermédiaire au voisinage de H_{sf}. Près de la transition d'échange, nous n'avons obtenu aucune atténuation qui pourrait résulter de phénomènes critiques tels que le couplage des ultrasons avec les fluctuations d'énergie magnétique ou d'aimantation longitudinale.

La méthode ultrasonore telle que nous l'avons décrite et utilisée peut être employée a priori pour tous les composés antiferromagnétiques. En ce qui concerne les expériences de résonance antiferromagnétique acoustique , nous avons vu certains avantages pratiques de cette méthode par rapport à la résonance électronique ; ces expériences étant faites à 10 GHz, elles ne peuvent être menées au-dessu de 20°K, température au-delà de laquelle les ultrasons se trouvent être fortement atténués à cette fréquence. On peut donc songer à mesurer des largeurs de raie de résonance en fonction de T jusqu'à 20°K environ, ce qui représente une gamme de variation appréciable du rapport $\frac{T}{T_N}$ pour bon nombre de composés antiferromagnétiques. Pour ce qui est des diverses transitions de phase examinées et en particulier la transiti vers la phase paramagnétique, il convient de noter que , d'une manière générale, ces transitions en fonction du champ magnétique sont d'autant plus facilement accessibles que les interactions magnétiques sont plus faibles, c'est-à-dire que la température de Néel est plus basse ;

toutefois, pour des raisons expérimentales évidentes, il y a intérêt pour pouvoir explorer facilement la plus grande partie du diagramme de phase, à ce que cette température de Néel ne soit pas trop basse. Les ordres de grandeur correspondant à $GdAlO_3$ se sont montrés particulièrement adaptés à notre méthode expérimentale et celle-ci doit donner des résultats positifs dans tout composé de propriétés magnétiques voisines ; signalons l'intérêt qu'il y aurait à pouvoir étendre les mesures vers les températures plus basses, ne serait-ce que jusqu'à 0,3°K en utilisant un simple cryostat à ^3He.

Plus généralement, on peut dire que cette méthode peut être utilisée pour tous les composés magnétiques présentant des transitions de phase en présence d'un champ magnétique extérieur, ou dans lesquels on peut amener la fréquence des ondes de spin de vecteur d'onde nul à être de l'ordre de la fréquence ultrasonore. Les renseignements obtenus concernent à la fois le couplage magnétoélastique et les propriétés magnétiques statiques et dynamiques. Signalons, par exemple, l'intérêt de poursuivre ces mesures dans des cristaux qui présentent un ordre magnétique à une ou deux dimensions, et dans lesquels on sait que le spectre des ondes de spin a des propriétés tout à fait anisotropes.

APPENDICE 1

"SYMETRIE" DES ONDES DE SPIN DANS LES PHASES ANTIFERROMAGNETIQUE ET FLOPPEE

La symétrie des ondes de spin, c'est-à-dire la nature des modes propres de vibrations de l'aimantation, apparaît de manière simple lorsque l'on calcule les lois de dispersion par la méthode des équations du mouvement, c'est-à-dire en écrivant pour chaque spin :

$$\hbar \frac{d\vec{S}}{dt} = g\mu_B \vec{S} \wedge \vec{H}_o$$

où $\vec{H}_o$ est le champ effectif agissant sur le spin considéré. Ce champ est défini par $g\mu_B H = - \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial \vec{S}}$, $\mathcal{H}$ étant l'hamiltonien du système . Soit :

$$\mathcal{H} = 2J \sum_{\ell m} \vec{S}_\ell \cdot \vec{S}_m - K \left(\sum_\ell S_Z^{\ell 2} + \sum_m S_Z^{m 2} \right) - g\mu_B H \left(\sum_\ell S_Z^\ell + \sum_m S_Z^m \right)$$

Dans la phase antiferromagnétique, les équations du mouvement s'écrivent :

$$\frac{1}{\gamma} \frac{dS_X^\ell}{dt} = (H_E + H_A + H) S_Y^\ell + H_E S_Y^m = \frac{i\omega}{\gamma} S_X^\ell$$

$$\frac{1}{\gamma} \frac{dS_Y^\ell}{dt} = -(H_E + H_A + H) S_X^\ell - H_E S_X^m = \frac{i\omega}{\gamma} S_Y^\ell$$

$$\frac{1}{\gamma} \frac{dS_X^m}{dt} = -(H_E + H_A - H) S_Y^m - H_E S_Y^\ell = \frac{i\omega}{\gamma} S_X^m$$

$$\frac{1}{\gamma} \frac{dS_Y^m}{dt} = (H_E + H_A - H) S_X^m + H_E S_X^\ell = \frac{i\omega}{\gamma} S_X^m$$

$$\frac{1}{\gamma} \frac{dS_Z^\ell}{dt} = \frac{1}{\gamma} \frac{dS_Z^m}{dt} = 0$$

où l'on a supposé que $S_Z^\ell = - S_Z^m = S$.

Si on utilise les variables circulaires définies par :

$$S_+ = S_X + i\,S_Y$$

on voit que ces quatre équations du mouvement se séparent en deux groupes de deux équations contenant respectivement S_+^ℓ et S_+^m pour le premier groupe, S_-^ℓ et S_-^m pour le second :

$$\begin{cases} \omega - \gamma\,(H_E + H_A + H)\,S_+^\ell - \gamma H_E\,S_+^m = 0 \\ \omega + \gamma\,(H_E + H_A - H)\,S_+^m + \gamma H_E\,S_+^\ell = 0 \end{cases}$$

$$\begin{cases} \omega + \gamma\,(H_E + H_A + H)\,S_-^\ell + \gamma H_E\,S_-^m = 0 \\ \omega - \gamma\,(H_E + H_A - H)\,S_-^m - \gamma H_E\,S_-^\ell = 0 \end{cases}$$

Chaque groupe d'équation donne une fréquence d'onde de spin correspondant aux modes α et β de la phase antiferromagnétique. On voit que l'un des modes résulte des mouvements simultanés de chaque sous-réseau définis par S_+^ℓ et S_+^m, l'autre des mouvements définis par S_-^ℓ et S_-^m. C'est en ce sens que nous disons qu'un des modes d'onde de spin a la symétrie de S_+^ℓ et S_+^m (parce que le vecteur propre correspondant est une combinaison linéaire de S_+^ℓ et S_+^m),et que l'autre a la symétrie de S_-^ℓ et S_-^m.

Dans la <u>phase floppée</u> en utilisant les notations introduites au chapitre II, et en tenant compte de la condition d'équilibre des spins ($\cos\theta = \dfrac{H}{2H_E - H_A}$), les équations du mouvement s'écrivent :

$$\frac{i\omega}{\gamma}\,\tilde{S}_x^\ell = \left[(H_E - H_A)\cos 2\theta - H\cos\theta\right]\tilde{S}_y^\ell - H_E\cos 2\theta\;\tilde{S}_y^m$$

$$\frac{i\omega}{\gamma}\,\tilde{S}_y^\ell = \left[-H_E\cos 2\theta + H_A\cos^2\theta + H\cos\theta\right]\tilde{S}_x^\ell + H_E\,\tilde{S}_x^m$$

$$\frac{i\omega}{\gamma}\,\tilde{S}_x^m = \left[(H_E - H_A)\cos 2\theta - H\cos\theta\right]\tilde{S}_y^m - H_E\cos 2\theta\;\tilde{S}_y^\ell$$

$$\frac{i\omega}{\gamma}\,\tilde{S}_y^m = \left[-H_E\cos 2\theta + H_A\cos^2\theta + H\cos\theta\right]\tilde{S}_x^m + H_E\,\tilde{S}_x^\ell$$

Ici, les variables circulaires que l'on peut définir pour chaque sous-réseau ne sont pas les bonnes variables, et, pour suivre le même raisonnement que celui décrit dans le cas de la phase antiferromagnétique, il faut utiliser les variables définies par :

$$S_x^{\pm} = \tilde{S}_x^{\ell} \pm \tilde{S}_x^{m}$$

$$S_y^{\pm} = \tilde{S}_y^{\ell} \pm \tilde{S}_y^{m}$$

Les équations du mouvement se séparent alors comme précédemment en deux groupes de deux équations chacun, qui s'écrivent :

$$\begin{cases} i\omega \; S_x^{+} + \gamma \; (H_A \cos 2\theta + H \cos\theta) \; S_y^{+} = 0 \\ i\omega \; S_y^{+} - \gamma \; \left[H_E(1-\cos 2\theta) + H_A \cos^2\theta + H \cos\theta\right] \; S_x^{+} = 0 \end{cases}$$

$$\begin{cases} i\omega \; S_x^{-} - \gamma \; \left[(2H_E - H_A) \cos 2\theta - H \cos\theta\right] S_y^{-} = 0 \\ i\omega \; S_y^{-} + \gamma \; \left|H_E(1+\cos 2\theta) - H_A \cos^2\theta - H \cos\theta \right. \quad S_x^{-} = 0 \end{cases}$$

Le premier couple d'équation correspond au mode β de la phase floppée (voir chapitre II) ; les mouvements propres de l'aimantation sont pour ce mode des combinaisons de $\tilde{S}_x^{\ell} + \tilde{S}_x^{m}$ et $\tilde{S}_y^{\ell} + \tilde{S}_y^{m}$. La fréquence du mode α est donnée par les deux dernières équations couplées, et on voit qu sa symétrie est déterminée par $\tilde{S}_x^{\ell} - \tilde{S}_x^{m}$ et $\tilde{S}_y^{\ell} - \tilde{S}_y^{m}$.

En un sens, on peut donc dire que les vibrations propres de l'aimantation dans la phase floppée correspondent à des mouvements des spins qui sont plus compliqués que dans la phase antiferromagnétique : si on peut en donner une image simple dans ce dernier cas[63], il n'en est pas de même dans la phase floppée.

APPENDICE 2

LOIS DE DISPERSION DES ONDES MAGNETOELASTIQUES.

Considérons un cristal dans lequel existe un couplage résonnant entre les ultrasons et les ondes de spin. Ce système est décrit par l'hamiltonien :

$$\mathcal{H} = \sum_k \left[\hbar\omega_{us}\, a_k^+ a_k + \hbar\omega_{spin}\, \alpha_k^+ \alpha_k + i\, g_k (a_k \alpha_k^+ - \alpha_k a_k^+) \right]$$

où g_k représente un coefficient de couplage.

Cet hamiltonien peut être diagonalisé par la transformation suivante :

$$a_k = \frac{1}{2}(A_k \cos\xi_k + B_k \sin\xi_k)$$

$$\alpha_k = \frac{1}{2}(B_k \cos\xi_k - A_k \sin\xi_k)$$

On a alors :

$$\mathcal{H} = \sum_k \left[\hbar\omega_{me}^{(1)}\, A_k^+ A_k + \hbar\omega_{me}^{(2)}\, B_k^+ B_k \right]$$

avec : $\hbar\omega_{me}^{(1)} = \hbar\omega_{spin} \cos^2\xi_k + \hbar\omega_{us} \sin^2\xi_k - 2\, g_k \sin\xi_k \cos\xi_k$

$\hbar\omega_{me}^{(2)} = \hbar\omega_{us} \cos^2\xi_k + \hbar\omega_{spin} \sin^2\xi_k + 2\, g_k \sin\xi_k \cos\xi_k$

$$\operatorname{tg} 2\xi_k = \frac{2g_k}{\hbar(\omega_{us} - \omega_{spin})}$$

$\omega_{me}^{(1)}$ et $\omega_{me}^{(2)}$ représentent les fréquences propres du système, c'est-à-dire les fréquences des ondes magnétoélastiques qui sont représentées sur la figure 8.

Supposons que, par exemple sous l'effet d'un champ magnétique, la courbe de dispersion des ondes se spin se déplace vers les fréquences plus faibles : c'est le cas du mode d'onde de spin β dans la phase antiferromagnétique, avec le champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation. Soit H_C le champ pour lequel $\omega_{spin}(k = 0) = 0$. On peut poser :

$$\omega_{spin}(k = 0) = \frac{g\mu_B}{\hbar} (H_C - H)$$

Le cristal subira une transition lorsque $\left(\frac{d\omega_{me}^{(2)}}{dk} \right)_{k=0} = 0$. En utilisant la relation qui définit ξ_k, on a :

$$\frac{d\omega_{me}^{(2)}}{dk} = v_{us} \cos^2 \xi_k + v_{spin} \sin^2 \xi_k + \frac{2}{\hbar} \frac{dg_k}{dk} \sin\xi_k \cos\xi_k$$

Pour $k = 0$, $v_{spin} = 0$. Nous prendrons comme coefficient g_k (voir chapitre 4) :

$$g_k = \left(\frac{\hbar\omega}{2Mv_{us}^2} \right)^{1/2} S(2S)^{1/2} G(ch\theta_k - sh\theta_k) = g_o k^{1/2} e^{-\theta_k}$$

avec :

$$g_o = \left(\frac{\hbar}{2Mv_{us}} \right)^{1/2} S(2S)^{1/2} G$$

$$e^{-\theta_k} = \frac{1}{2} \left(\frac{2}{\lambda(ka)^2 + H_A/H_E} \right)^{1/4}$$

Lorsque $k \to 0$: $\dfrac{dg_k}{dk} \to \dfrac{1}{4}\, g_o\, k^{-1/2} \left(\dfrac{2H_E}{H_A} \right)^{1/4}$

$$\sin 2\xi_k \simeq \operatorname{tg} 2\xi_k \simeq \frac{2g_k}{-\hbar\omega_{spin}} = \frac{g_o k^{1/2} \left(\dfrac{2H_E}{H_A}\right)^{1/4}}{-g\mu_B (H_C - H)}$$

donc

$$\frac{1}{\hbar} \frac{dg_k}{dk} \sin 2\xi_k = \frac{1}{4\hbar} \frac{g_o^2 (2H_E/H_A)^{1/4}}{-g\mu_B (H_c - H)}$$

Le champ critique H_C^* pour lequel $\left(\dfrac{d\omega_{me}^{(2)}}{dk} \right)_{k=0} = 0$ est donc donné par :

$$v_{us} = \frac{1}{4\hbar} \frac{g_o^2 (2H_E/H_A)^{1/2}}{g\mu_B (H_C - H_C^*)}$$

$$H_C^* = H_C - \frac{1}{4\hbar} \frac{g_o^2 (2H_E/H_A)^{1/2}}{g\mu_B\, v_{us}}$$

soit en tenant compte du fait que $H_C = \sqrt{2H_E H_A}$:

$$H_C^* = H_C \left[1 - \frac{S^3 G^2}{4Mv_{us}^2\, g\mu_B\, H_A} \right]$$

APPENDICE 3

TEMPS DE RELAXATION ET LARGEUR DE RAIE LORENTZIENNE

La courbe de Lorentz qui décrit une répartition des fréquences autour d'une valeur moyenne ω_o a pour équation :

$$f(\omega-\omega_o) = \frac{T_2}{\pi} \frac{1}{1 + T_2^2(\omega-\omega_o)^2}$$

Le maximum de cette fonction est donnée par $\omega = \omega_o = f(o) = \frac{T_2}{\pi}$
A mi-hauteur, on a donc :

$$f(\omega-\omega_o) = \frac{1}{2} \frac{T_2}{\pi}$$

ce qui correspond à la condition $\omega - \omega_o = \pm \frac{1}{T_2}$

La largeur totale à mi-hauteur de cette fonction est donnée par:

$$\Delta\omega = 2|\omega-\omega_o| = \frac{2}{T_2}$$

$$\text{soit} \quad T_2 = \frac{2}{\Delta\omega} = \frac{2\hbar}{g\mu_B \Delta H}$$

Si on prend $g = 2$, on obtient finalement :

$$T_2 = \frac{1,08\ 10^{-7}}{\Delta H}$$

BIBLIOGRAPHIE

(1) E.H. JACOBSEN, Phys.Rev.Lett. 2, 249 (1959).

(2) M. BOITEUX, P. DOUSSINEAU, B. FERRY, U.T. HÖCHLI, Phys.Rev. B6, 2752 (1972).

(3) [illegible] Phys.Rev.Lett. 28, 1704 (1972).

(4) P. DOUSSINEAU, B. FERRY, J. de Physique 35, 71 (1974).

(5) P. DOUSSINEAU, B. FERRY, Phys.Lett. 46A, 135 (1973).

(6) F. KEFFER. Handbuch der Physik XVIII/2 , Springer Verlag (1966).

(7) F.B. ANDERSON, H.B. CALLEN. Phys.Rev. 136 A, 1068 (1964).

(8) Y.L. WANG, H.B. CALLEN. J. Phys.Chem.Solids, 25, 1459 (1964).

(9) J. FEDER, E. PYTTE. Phys.Rev. 168, 640 (1968).

(10) L.W. HINDERKS, P.M. RICHARDS. Phys.Rev. 183, 575 (1969).

(11) B.I. HALPERIN, P.C. HOHENBERG. Phys.Rev. 188, 898 (1969)

(12) [illegible] J. Appl.Phys. 42, 1651 (1971).

(13) C.W. GARLAND. Physical Acoustics, Vol.VII, Academic Press New York (1970).

(14) B. LUTHI, T.J. MORAN, R.J. POLLINA. J. Phys.Chem.Solids 31, 1741 (1970).

(15) J. JOFFRIN . J. Physique. Suppl.33, C6, 127 (1972).

(16) Y. SHAPIRA. J. Appl.Phys. 42, 1588 (1971) et références citées.

(17) R.L. MECHLER. Phys.Rev.Lett. 25, 235 (1970).

(18) R.L.MECHLER, D.I. BOLEF, R.W.H. STEVENSON. Solid State Commun. [illegible]

(19) I. WALLER. Z. Physik 79, 370 (1932).

(20) D.H. Mac MAHON, R.H. SILSBEE. Phys.Rev. 135 A , 91 (1964).

(21) J.H. VAN VLECK. J. Chem.Phys. 7, 72 (1939) et Phys.Rev. 57, 426 (

(22) J. KANAMORI. Magnetism I, édité par T. Rado et H. Suhl. Academic Press. (1963).

(23) B. GOLDING. Phys.Rev.Lett. 27, 1142 (1971).

(24) C.P. BEAN, D.S. RODBELL. Phys.Rev. 126, 104 (1962).

(25) C. KITTEL. Phys.Rev. 110, 836 (1958).

(26) A.I. AKHIEZER, V.G. BAR'YAKHTAR, S.V. PELETMINSKII. Sov.Phys.JETP. 35, 157 (1959).

(27) M. SPARKS. Ferromagnetic Relaxation Theory. Mac Graw Hill. (1964). et références citées.

(28) K.P. SINHA, U.N. UPADHYAYA. Phys.Rev. 127, 432 (1962).
U.N. UPADHYAYA, K.P. SINHA. Phys.Rev. 130, 939 (1963).

(29) K.P. SINHA, R.C. LE CRAW. J. Phys.Chem.Solids. 32, 373 (1971).

(30) D. WALTON. Conférence Internationale sur la Diffusion des Phonons dans les Solides. Paris (1972). Edité par H.J. Albany. (CEN Saclay).

(31) T. KASUYA, R.C. LE CRAW. Phys.Rev.Lett. 6, 223 (1961).

(32) F.A. OLSON. J. Appl.Phys. 34, 1281 (1963).

(33) W.G. NILSEN, R.L. COMSTOCK, R.L. WALKER. Phys.Rev. 139 A, 472 (1965).

(34) D. WALTON, J.E. RIVES, Q. KHALID, Phys.Rev. B8, 1210 (1973).

(35) G. LAURENCE, D. PETITGRAND. Phys.Rev. B8, 2130 (1973).

(36) P. PINCUS, J.M. WINTER. Phys.Rev.Lett. 7, 269 (1961).

(37) G.K. CHEPURNYKH. Sov.Phys.Solid State. 10, 1517 (1968).

(38) H. ROHRER, H. THOMAS. J. Appl.Phys. 40, 1025 (1969).

(39) V.G. MOROZOV. Phys.Stat.Sol. (b) 50, 479 (1972).

(40) K.W. BLAZEY, K.A. MULLER, M. ONDRIS, H. ROHRER. Phys.Rev.Lett. 24,105 (1970).

(41) D.L. MILLS. Phys.Rev.Lett. 20, 18 (1968).
D.L. MILLS, W.M. SASLOV. Phys.Rev. 171, 488 (1968).

(42) F. KEFFER, H. CHOW. Phys.Rev.Lett. 31, 1061 (1973).

(43) V.G. BAR'YAKHTAR, A.E. BOROVIK, V.A. POPOV. JETP Lett. 9, 391 (1969).

(44) V.G. BAR'YAKHTAR, A.E. BOROVIK, V.A. POPOV, E.P. STEFANOVSKII. Sov.Phys.Solid State. 13, 2718 (1972).

(45) V.G. BAR'YAKHTAR, V.F. KLEPIKOV, V.A. POPOV, E.P. STEFANOVSKII
Sov.Phys.Sol.State. 14, 955 (1972).
(46) V.G. BAR'YAKHTAR, A.E. BOROVIK, V.A. POPOV.
Sov.Phys.JETP 35, 1169 (1972).
(47) K.L. DUDKO, V.V. EREMENKO, V.M. FRIDMAN.
Sov.Phys.JETP. 34, 362 (1971).
(48) A.R. KING, O. PAQUETTE. Phys.Rev.Lett. 30, 582 (1973).
(49) A.A. MIL'NER, Y.A. POPKOV, V.V. EREMENKO.
JETP Lett. 18, 20 (1973).
(50) K.L. DUDKO, V.V. EREMENKO, V.V. FRIDMAN.
Sov.Phys.JETP 34, 828 (1972).
(51) T. NAGAMIYA, T. NISHIKUBO. J. de Physique. 32, C1-769 (1971).
(52) E.J. SAMUELSEN. Physica 41, 12 (1969).
(53) R.L. MECHLER. J. Appl. Phys. 41, 1412 (1970).
(54) S. GELLER, B. BALA. Acta Cryst. 9, 1019 (1956).
(55) K.W. BLAZEY, H. ROHRER. Phys.Rev. 173, 574 (1968).
(56) J.F.B. HAWKES, M.J.M. LEASK. J.Phys.C 1, 165 (1968).
(57) J.D. CASHION, A.H. COOKE, T.L. THORP, M.R. WELLS.
Proc.Roy.Soc.(London) A 318, 473 (1970).
(58) K.W. BLAZEY, H. ROHRER, R. WEBSTER.
Phys.Rev. B4, 2287 (1971).
(59) A. HERPIN, P. MERIEL. Compt. Rend. 259, 2415 (1964).
(60) W.I. DOBROV. Phys.Rev. 134 A, 734 (1964).
(61) P. DOUSSINEAU. Thèse de 3ème Cycle. Université de Paris (1971).
(62) R.L. MECHLER. Phys.Rev.Lett. 25, 235 (1970).
(63) S. FONER. Magnetism I. édité par T. Rado et H. Suhl. Acad.Press. (196
(64) G.I. URUSHADZE. Sov.Phys.JETP 12, 476 (1961).
(65) K. TANI. Progr.Theor. Phys. 31, 335 (1964).
(66) K. KAWASAKI. Progr.Theor.Phys. 34, 357 (1965).

(67) A.B. HARRIS. J. Appl.Phys. 37, 1128 (1966).

(68) A.B. HARRIS, D. KUMAR, B.I. HALPERIN, P.C. HOHENBERG.
J. Appl.Phys. 41, 1361 (1970).
Phys.Rev. B3, 961 (1971).

(69) F.M. JOHNSON, A.N. NETHERCOT.
Phys.Rev. 114, 705 (1959).

(70) K. NAGATA, M. DATE. J. Phys.Soc.Japan, 21, 2420 (1966).

(71) J.C. BURGIEL, W.P. STRANDBERG.
J. Phys.Chem.Solids 26, 865 (1965).

(72) M.S. SEEHRA, T.G. CASTNER. Phys.Rev. B1, 2289 (1970).

(73) J.P. KOTTHAUS, V. JACCARINO.
Phys.Rev.Lett. 28, 1649 (1972).
Phys.Lett. 42A, 361 (1973).

(74) J.P. KOTTHAUS, R. SANDERS, V. JACCARINO.
Conférence Internationale de Magnétisme. Moscou (1973).

(75) S.V. PELETMINSKII. Sov.Phys. JETP. 10, 321 (1960).

(76) M.A. SAVCHENKO. Sov.Phys.Sol.State. 6, 666 (1964).

(77) V.G. BAR'YAKHTAR, M.A. SAVCHENKO, V.V. TARASENKO.
Sov.Phys.JETP. 22, 657 (1966).

(78) H. TANI. J. Phys.C (Solid St.Phys.) 3, 1597 (1970) et articles de l'auteur cités.

ACADÉMIE DE PARIS

UNIVERSITÉ DE PARIS VI

Place Jussieu - 75230 PARIS-CEDEX 05

SERVICE DE LA SCOLARITE

Bureau des Enseignements du 3e cycle

TÉLÉPHONE : 336-25-25 - 325-12-21

PERMIS D'IMPRIMER

DOCTORAT : ES SCIENCES

THESE DE : PHYSIQUE

NOM : FERRY

Prénoms : Benoit

né le 5 MAI 1943 à PARIS Dépt :

1ère THESE : " Interactions entre les ultrasons et les ondes de spin dans les différentes phases magnétiques d'un antiferromagnétique uniaxial."

2e THESE (Propositions faites par l'Université) :

IDENT : M. BOK

INATEURS : MM. FOFFRIN
WINTER
ZAREMBOVITCH

ACADÉMIE DE PARIS UNIVERSITÉ PARIS VI

Vu et Approuvé

PARIS, le 5 MARS 1974

Le Président

de l'Université de PARIS VI